

KONINKLIJKE AKADEMIE VAN WETENSCHAPPEN
TE AMSTERDAM

PROCEEDINGS

VOLUME XXXIII

No. 7

President: F. A. F. C. WENT

Secretary: B. BROUWER

CONTENTS

W. J. DE HAAS and C. J. GORTER: "Determination of the susceptibility of potassium-chromium-alum at low temperatures", p. 676.

W. J. DE HAAS and P. M. VAN ALPHEN: "Note on the dependance of the susceptibility of diamagnetic metals on the field", p. 680.

L. S. ORNSTEIN and A. M. VAN DOMMELLEN: "Optical determination of the sphere of action of atoms for electrons", p. 683.

P. VAN ROMBURGH, A. G. VAN VEEN and A. J. HAAGEN SMIT: "Minjak Pelandjau, the exudation from the Wood of Pentaspadon Motleyi Hook f." (Third communication), p. 690.

F. A. H. SCHREINEMAKERS: "Change of the Osmotic Water Attraction of a system of phases". I, p. 694.

G. VAN ITERSON Jr. und Frl. C. HOMAN VAN DER HEIDE: "STEMPEL's Versuche zum Nachweis der mitogenetischen Strahlung mit Hilfe der LIESEGANG'schen Ringe", p. 702. (With one plate).

J. W. A. VAN KOL: "Eine Abbildung des vierfach unendlichen Systems der biquadratischen Raumkurven erster Art, welche durch fünf gegebene Punkte gehen und eine gegebene Doppelsekante haben, auf einen linearen vierdimensionalen Punktraum". (Communicated by Prof. HK. DE VRIES), p. 707.

J. CLAY: "Ultra Radiation (penetrating radiation). III. Annual variation and variation with the geographical latitude". (Communicated by Prof. ZEEMAN), p. 711.

H. P. BERLAGE Jr.: "On the electrostatic field of the sun as a factor in the evolution of the planets". (Communicated by Prof. H. A. KRAMERS), p. 719.

M. ZIEGLER: "The application of the hot-wire anemometer for the investigation of the turbulence of an airstream". (Communicated by Prof. H. A. KRAMERS), p. 723.

A. SMITS und Frl. H. S. VENING MEINESZ: "Untersuchungen zur Realisierung eines Zerfalls des Blei-Atoms". III. (Communicated by Prof. P. ZEEMAN), p. 737.

E. H. BÜCHNER und P. J. P. SAMWEL: "Der osmotische Druck und das Molekulargewicht von Acetylcellulose". (Vorläufige Mitteilung.) (Communicated by Prof. F. A. H. SCHREINEMAKERS), p. 749.

R. JEENER: "Evolution des centres diencéphaliques périventriculaires des Téléostomes". (Communicated by Prof. C. U. ARIËNS KAPPERS), p. 755. (With two plates).

J. J. A. BERNSEN O.F.M.: "On a Fossil Monkey found in the Netherlands (Macacus of florentinus Cocchi)". (Communicated by Prof. EUG. DUBOIS), p. 771. (With one plate).

TH. WEEVERS: "Das Quercetin bei den Magnoliaceae und seine Verbreitung im Pflanzenreiche". (Communicated by Prof. J. C. SCHOUTE), p. 778.

Physics. — *Determination of the susceptibility of potassium-chromium-alum at low temperatures.* By W. J. DE HAAS and C. J. GORTER. (Communication N°. 208c. of the physical laboratory, Leiden.)

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

Introduction. As is known, the magneton numbers calculated according to HUND¹⁾ are in good agreement with the experimental results for the salts of the rare earths but not for those of the iron group.

LAPORTE and SOMMERFELD²⁾ tried to explain this by remarking, that because of the low nuclear charges we might expect much smaller multiplet separations in the iron group than for the rare earths, so that at room temperature besides the lowest level also the other levels of the fundamental multiplet should be more or less occupied.

At lower temperature we then should find the magneton number as calculated according to HUND.

A quantitative discussion by LAPORTE³⁾ showed however, that the agreement between theory and experiment has not yet been improved very much, when the term resolutions that are to be expected are taken into consideration and when a BOLTZMANN distribution over the energy levels is assumed.

It might be possible however, that for the definite explanation of the magneton numbers the temperature distribution over the different energy levels is of importance⁴⁾. If these different energy levels have different magnetic properties, anomalies must occur at low temperatures (see the discussion of the results).

As the experimental magneton number of the chromic-ion (about 19 W.M.) shows the greatest deviation from the value calculated according to HUND (3.9 W.M.), we investigated in this laboratory the susceptibilities of a series of chromic-compounds at low temperatures.

Especially for chrome alum the result is of importance because of the great paramagnetic dilution and the cubical structure.

§ 1. *Material and Method.* As pulverized chrome-alum, when exposed to the air gradually loses water, we selected good crystals from a specimen procured by SCHERING-KAHLBAUM (Alumen chromicum puriss., iron free). These crystals were pulverized, the glass investigation tube was filled with this powder, helium gas was introduced into the tube and finally the tube was sealed off.

¹⁾ F. HUND, Zs. f. Phys. **33**, 855, 1925.

²⁾ O. LAPORTE und A. SOMMERFELD, Zs. f. Phys. **40**, 333, 1926.

³⁾ O. LAPORTE, Zs. f. Phys. **47**, 761, 1928.

⁴⁾ Also eventual STARCK-effect separations have to be considered. See JEAN BECQUEREL and H. A. KRAMERS, Comm. Suppl. **68**, Leiden.

The measurements were made according to the rod method with the apparatus of KAMERLINGH ONNES and PERRIER¹). A stirrer and a platinum resistance thermometer were used.

The WEISS magnet used was calibrated ballistically with a polar distance of 24.3 mm.

Each point was the result of 10 measuring series at least.

§ 2. *Results:*

T	$\chi \cdot 10^6$	$\chi' \cdot 10^6$	$1/\chi' \cdot 10^{-4}$	$T \cdot \chi' \cdot 10^4$	$(T - 0.16) \chi' \cdot 10^4$
290.0	12.1 ⁵	12.6 ²	79.2	36.60	36.58
169.7	21.0 ⁸	21.5 ⁵	46.4 ⁰	36.57	36.53
143.6	25.0 ⁰	25.4 ⁷	39.2 ⁶	36.57	36.53
77.70	46.7 ²	47.1 ⁹	21.1 ⁹	36.67	36.59
64.50	56.5 ⁰	57.0 ⁷	17.5 ⁵	36.81	36.71
20.39	180.9	181.4	5.51 ³	36.99	36.69
17.16	214.6	215.1	4.64 ⁹	36.91	36.57
14.33	257.4	257.8	3.87 ⁹	36.94	36.53

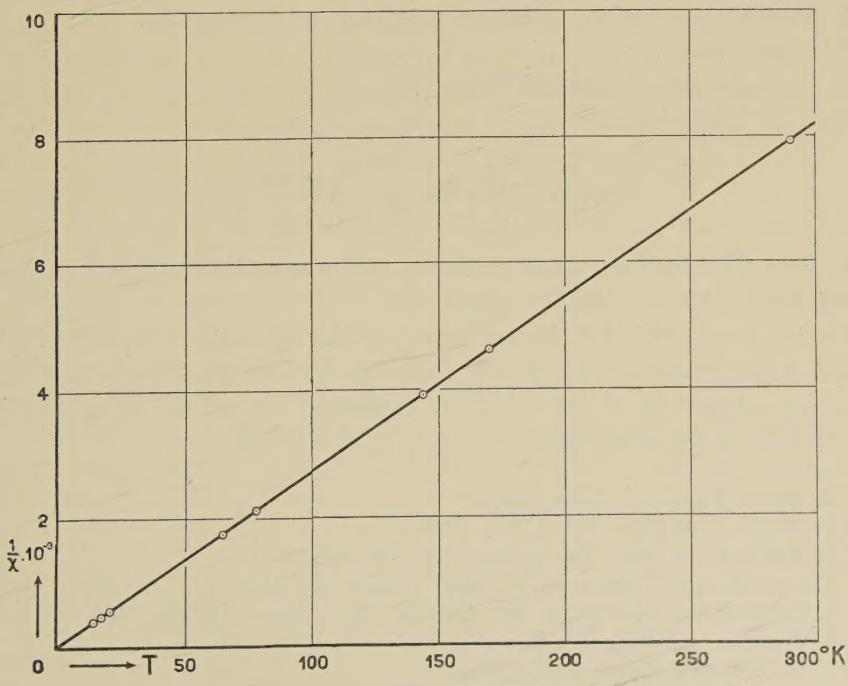


Fig. 1.

¹⁾ Comm. 139a and b. Leiden.

For the lowest temperatures the value of χ has been corrected already for the demagnetization according to BREIT¹⁾; that of χ' for the diamagnetism of the K and SO₄ ions and the crystalwater with the aid of the values given by WEISS²⁾.

The intensity of the field was varied from 6 to 15 KG without noticing a dependence of the susceptibility on the field.

A small deviation from the law of CURIE was found, so that we better

Using $C = 36.58 \cdot 10^{-4}$ we find for the magneton number $p = 19.02$ describe the observations by the law of CURIE-WEISS with $\theta = 0.16^\circ$.

WEISS magnetons, which value is in good agreement with the measurements of ISHIWARA and HONDA and of ISHIWARA for solid bodies and of CABRERA and his collaborators³⁾ for solutions. WOLTJER⁴⁾ found $p = 17.9$ for pulverized CrCl₃.

Discussion. If different levels with different magnetic properties should be of importance for the magnetic behaviour and if we neglect the WEISS field and v. VLECK's⁵⁾ "forgotten term" we should have to write:

$$\chi = \frac{\sum_h \mu_h^2 \cdot g_h e^{-\frac{E_h}{KT}}}{3KT \sum_h g_h e^{-\frac{E_h}{KT}}}$$

where the summation has to be extended over the different energy levels with magnetic moment μ_h , statistical weight g_h and energy E_h .

We may expect:

a. for high temperature ($KT \gg \Delta E$)
the law of CURIE-WEISS with:

$$\theta = \frac{\sum_h E_h g_h}{K \sum_h g_h} - \frac{\sum_h E_h g_h \mu_h}{K \sum_h g_h \mu_h}$$

b. when KT becomes of the order of ΔE , anomalies analogous to those found for CoSO₄ or NiSO₄ · 7H₂O⁶⁾.

θ being very small for chrome alum and no anomalies whatever being found at low temperatures, we may conclude that energy differences of the order of magnitude of the multiplet resolution are of no value for the explanation of the experimental value $p = 19.0$ W.M.

¹⁾ G. BREIT, Suppl. 46, Comm. Leiden.

²⁾ P. WEISS, J. de Phys. VII, 1, 185, 1930.

³⁾ T. ISHIWARA Sc. Rep. Tohoku Imp. Univ. III, 303, 1914.

K. HONDA and T. ISHIWARA, Sc. Rep. Tohoku Imp. Univ. IV, 215, 1915.

B. CABRERA and MARQUINA, An. Soc. Esp. Fis. y Quim. 15, 199, 1917.

B. CABRERA and PINA, An. Soc. Esp. Fis. y Quim. 20, 175 and 509, 1922.

⁴⁾ H. R. WOLTJER, Comm. 173b, Leiden.

⁵⁾ J. H. VAN VLECK, Phys. Rev. 31, 587, 1928.

⁶⁾ L. C. JACKSON, Comm. 163 Leiden.

The conception of BOSE¹), in which it is assumed, that in the chromic iron only the spin vector can freely orientate itself and which gives for the magneton number the value 18.9 is supported by the results of our investigations.

Summary. The susceptibility of $\text{Cr}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot \text{K}_2\text{SO}_4 \cdot 24\text{H}_2\text{O}$ has been measured from $14^\circ.33$ to 290.0° K. The law of CURIE-WEISS is followed with $\theta = 0.16^\circ$ and $C = 36.58 \cdot 10^{-4}$, which gives $p = 19.02$ WEISS magnetons. This behaviour is in disagreement with the ideas developed by SOMMERFELD and LAPORTE on the explanation of the magneton number in the *Fe* group.

We finally wish to express our thanks to Mr. H. BRUINING for his valuable help in the investigations.

¹) D. M. BOSE, Zs. f. Phys. **43**, 864, 1927.

Physics. — *Note on the dependance of the susceptibility of diamagnetic metals on the field.* By W. J. DE HAAS and P. M. VAN ALPHEN.
(Communication N°. 208d from the physical laboratory of Leiden.)

(Communicated at the meeting of September 27, 1930.)

Purpose of the investigation.

Many years ago one of us¹⁾ drew the attention to the connexion between the diamagnetic susceptibility and the change in resistance of metals in the magnetic field. The resistance measurements by L. SCHUBNIKOW and W. J. DE HAAS²⁾ of bismuth induced us to investigate whether the diamagnetic susceptibility shows analogous relations.

§ 1. The little rod used consisted of very pure bismuth.

It was suspended to a balance in helium gas between the poles of a magnet. The forces acting on the rod were measured with the FARADAY method.

A description of the whole apparatus, with which the determinations were made, will be published later. Measurements were made at 17° C. and at 20°.3 and 13°.5 K.

§ 2. Results.

The diamagnetic susceptibility of bismuth proves indeed to depend on the intensity of the field at least at very low temperatures.

That is why the FARADAY method is of no use for accurate measurements, so that we shall have to repeat the experiments with a small crystal in a known region of $H \frac{dH}{dx}$.

As by the use of the FARADAY method the values of the susceptibility could not yet be given accurately, we expressed the ordinates as the force on the rod in the figures.

At room temperature the susceptibility remains constant (fig. 1).

At low temperatures the curves have a form analogous to that of the curves of L. SCHUBNIKOW and W. J. DE HAAS for the resistance change of bismuth monocrystals in the magnetic field.

At the points *a* in fig. 2 and 3 the decrease of the susceptibility begins like the change of the resistance in the field.

¹⁾ W. J. DE HAAS, These Proc. **16**, p. 1110, 1914.

²⁾ L. SCHUBNIKOW and W. J. DE HAAS, These Proc. **33**, pp. 130, 363, 1930.

In fig. 3, *b* the diamagnetic susceptibility is nearly zero. We may expect that by the measurements with a small crystal in a gradient field this peculiarity will become still more prominent.

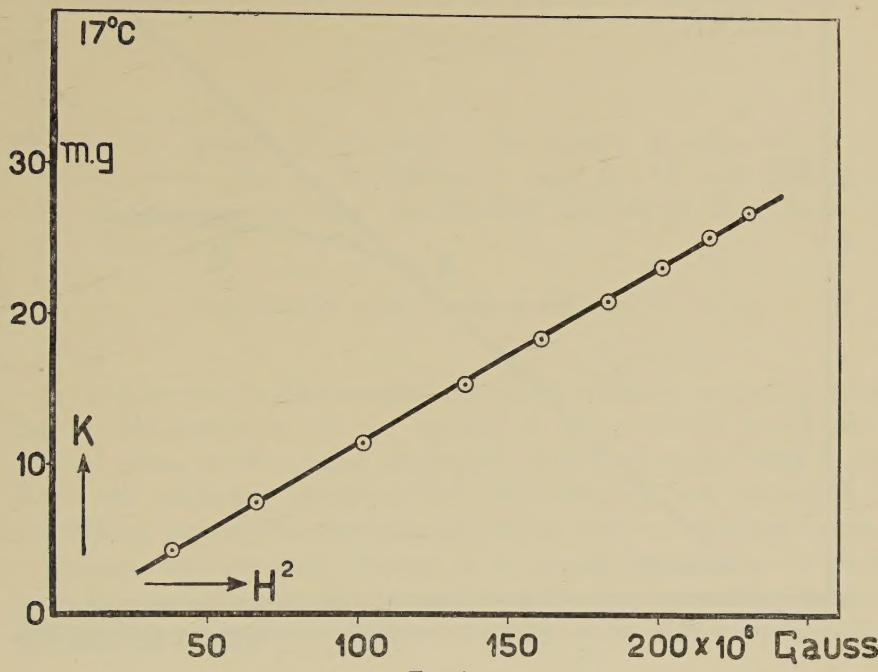


Fig. 1.

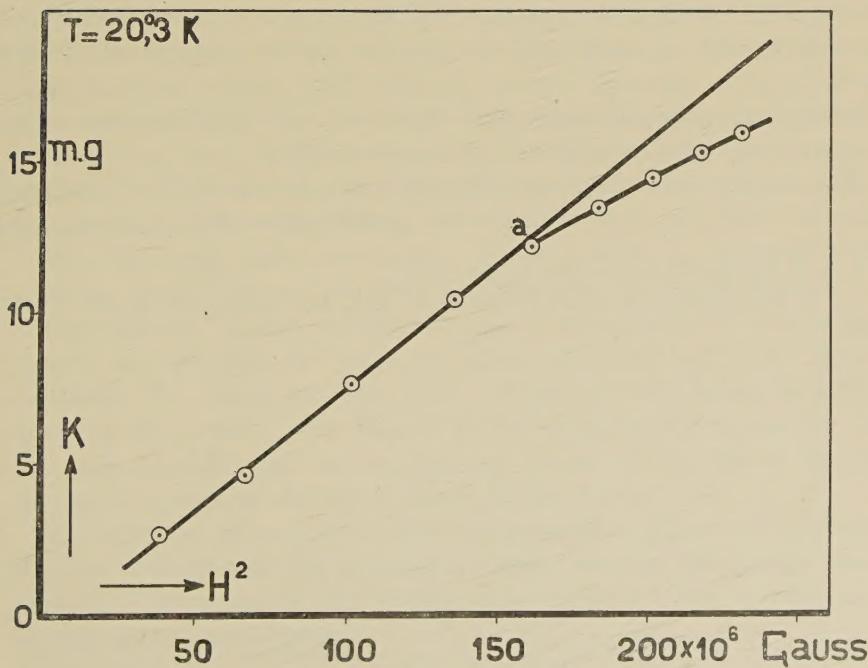


Fig. 2.

Our crystal was placed with the trigonal axis perpendicular to the field. Until now we have found, that a rotation of a bismuth monocrystal round

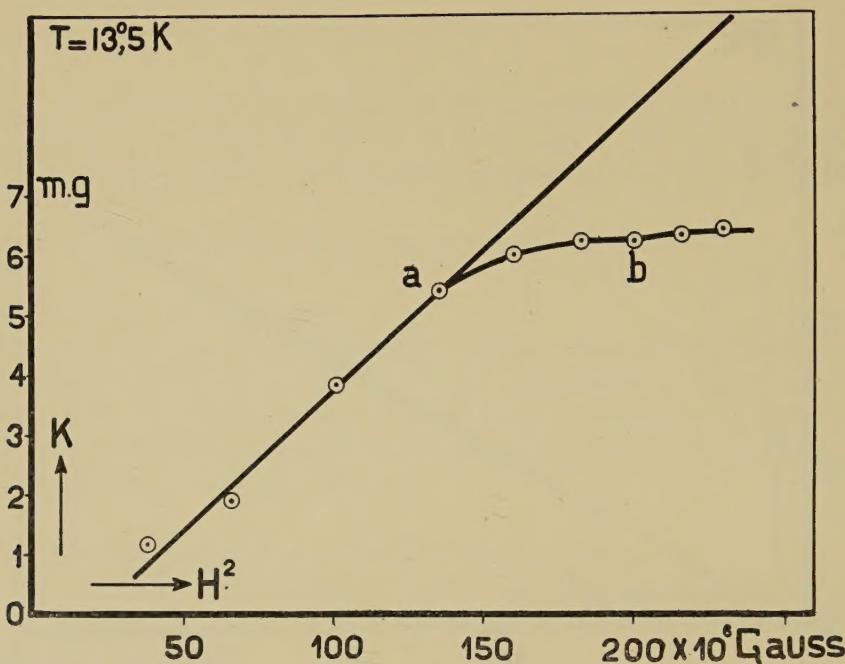


Fig. 3.

the trigonal axis does not produce a change in the susceptibility. This is the case as well for room temperature¹⁾ as for the temperature of liquid air²⁾.

At the low hydrogen temperatures however a rotation about the trigonal axis is accompanied by a change in the susceptibility.

The values represented in the figures belong to a position of the binary axis, for which the changes in the susceptibility have their maximal value.

¹⁾ A. B. FOCKE, Phys. Rev. **36**, p. 316, 1930.

²⁾ J. C. MC. LENNAN and E. COHEN, Trans. Roy. Soc. Canada **23**, section 3, p. 159, 1929.

Physics. — *Optical determination of the sphere of action of atoms for electrons.* By L. S. ORNSTEIN and A. M. VAN DOMMELEN. (Communication from the Physical Institute of the University of Utrecht).

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

In a previous communication one of us indicated an optical method for the determination of the sphere of action of He atoms¹⁾. The method given in the paper mentioned is limited to electronic energies above the excitation potential. We will show in this paper that it is possible to extend the measurements below that value taking a mixture of helium and mercury. Further it is possible to simplify the method in so far that intensity measurement is not necessary but that the density determination is sufficient for obtaining the value of the sphere of action.

The measurements were performed with the same type of tubes as described in (1). In order to get a mixture of helium and mercury in which the pressure of the mercury could be changed arbitrarily the tube was furnished with a side tube in which a quantity of liquid mercury was present. The tube and the side tube were heated electrically in such a way that the temperature of the side tube was the lower. The pressure of the mercury in the discharge tube was determined by the temperature of the other tube.

The discharge tube contained a glow cathode, a grid and a nickel cylinder, which formed the field free space in which electrons of given energy entered. In the cylinder was a slit provided with a wire wound round the cylinder in order to shield the lines of force from the cylinder. An image of the light excited by the beam of electrons entering the anode, was formed by an achromatic lens on the slit of the spectrograph and so we got an image of the slit in the anode, divided in parts by the sharp image of the wires.

A series of photographs were taken with a given voltage between the hot cathode and the cylindrical anode, varying the current from the cathode. Depending on the voltage either mercury lines or mercury and helium lines were obtained.

¹⁾ L. S. ORNSTEIN and W. ELENBAAS, Proceedings Amst. Vol. 32, 1929, p. 1345.

The intensity in the photographed lines is a function of the length (x) above the grid, the x -intensity curve depends on the active diameter of the mixture.

From the curves giving for separate values of x the intensity as a function of the logarithm of the current to the anode, the active diameter can be determined.

The intensity I_x at a point x is a function of the electron current i_x at that point.

If we compare two cases with anode currents i and i' then for both cases I_x and I'_x will be the same functions of i_x and i'_x , $I_x = f(i_x)$ or $I'_x = f(i'_x)$; when now at two points x_1 and x_2 $I_{x_1} = I'_{x_2}$, then we have also that $i_{x_1} = i'_{x_2}$. As has been assumed in the paper of ORNSTEIN and ELENBAAS $i_x = i e^{-\alpha x}$ where i is the total anode current and a the active diameter of the gas. Therefore if $I_{x_1} = I'_{x_2}$ we have also

$$i e^{-\alpha x_1} = i' e^{-\alpha x_2}$$

where i and i' represent again the anode current.

From this relation it is clear that when I is represented as a function of the logarithm of the anode current, the curves for two values of x will be parallel in the $\log i$ direction — if the exponential decrease at least of i_x is true.

Now the density D is a given function of the intensity, hence D is a given function of the current

$$D = F(i_x).$$

The same argument now is true, when for two values of x at different anode currents D is equal, i_{x_1} is again equal to i_{x_2} , and the density-anode current curves are parallel. From the distance of the anode-current-intensity or a-c-density curves a can be measured.

The coefficient a is given by the relation

$$a = \frac{1}{x_2 - x_1} \log \frac{i'}{i}.$$

The active diameter of a mixture is a linear combination of the diameters of the components. If a_{He} and a_{Hg} represent these diameters for 1 mm. than for a mixture with a Helium pressure 0,1 mm. and a mercury pressure of p mm, we get

$$a = 0.1 a_{He} + p a_{Hg}.$$

The pressure p of the mercury can be changed by altering the temperature, in this way a_{He} and a_{Hg} can be determined.

The $I - i$ and the $D - i$ curves are not parallel; as fig. 1 which gives the result for 23 V. electrons shows, the distance is larger for the

greater values of i (the abscis is the logarithm of the current, the ordinate the intensity of the 5461 line in an arbitrary scale).

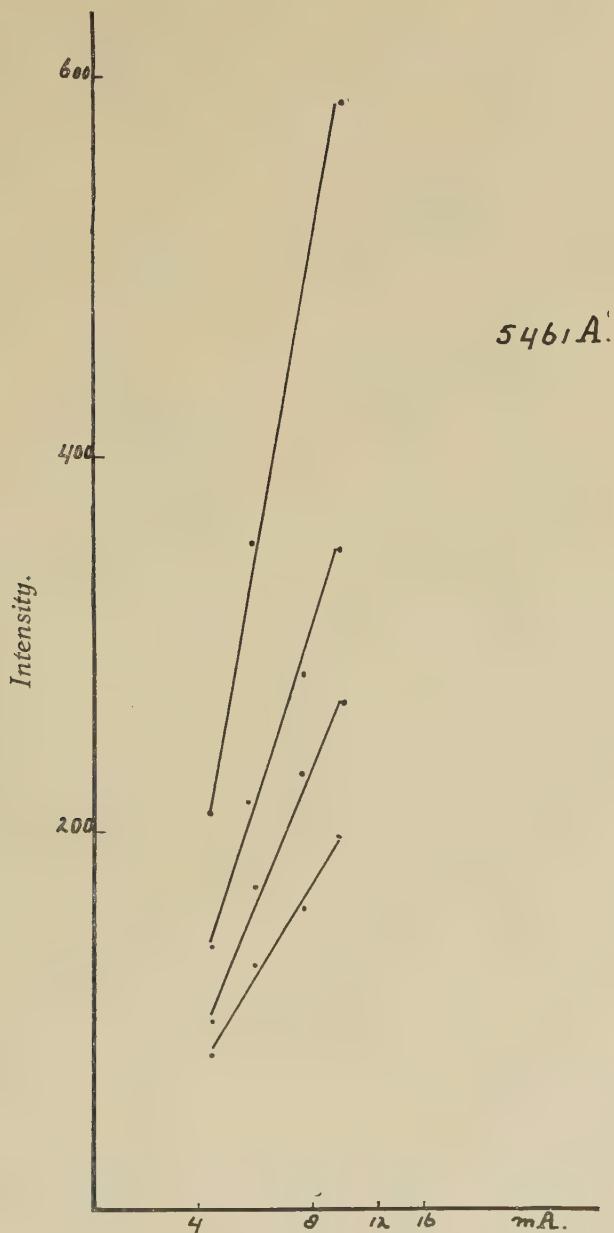


Fig. 1.

Anode current

In order to get better results it seems necessary to go to lower current densities; figure 2 gives the intensities for the 4348 line of

mercury for lower currents. We could get these results lowering the current in the glow-cathode, which causes that the electron velocities were

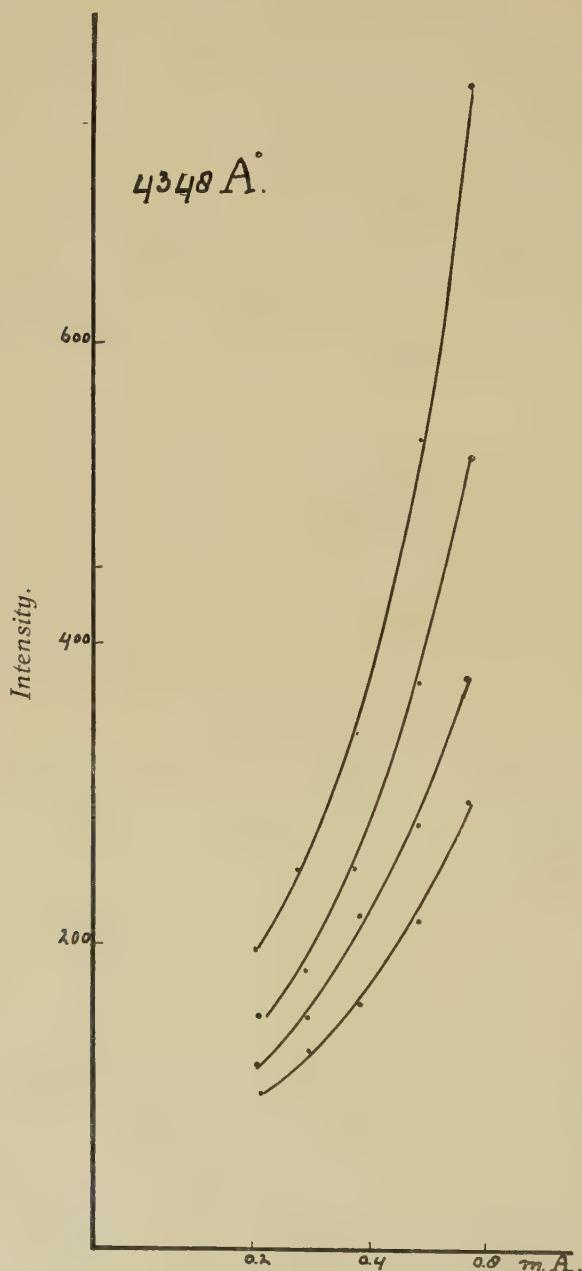


Fig. 2.

Anode current.

much more homogeneous. In fig. 3 the $D - i$ curves have been plotted.

Curves of the same type have been obtained for the 5791, 5770, 5461, 4358, 4078 and the 4047 lines of mercury.

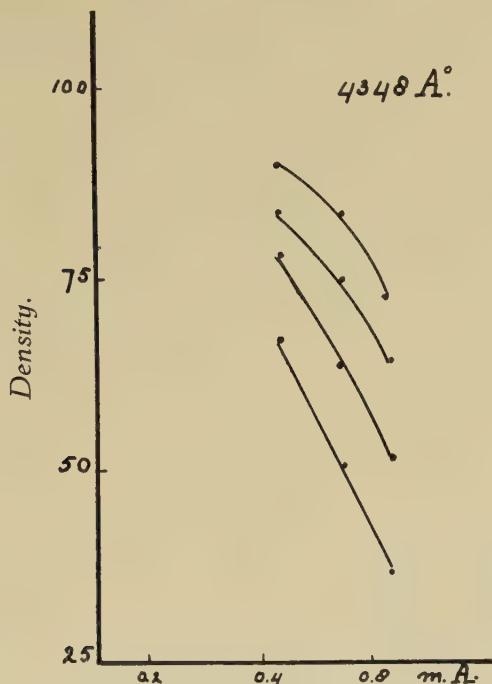


Fig. 3. Anode current.

Table I gives the resulting active-diameter for 20 V electrons as derived from different combination of distances from the intensity measurement

Curve:	Active-diameter:
I and II	1.26
I and III	1.34
I and IV	1.32
II and III	1.39
II and IV	1.35
III and IV	1.32
Mean $1.33 \text{ cm}^2/\text{cm}^3$	

From the density curves we got a mean value 1.40. When we take the RAMSAUER value for He and the value given by BRODE¹⁾ for Hg we get

$$1.10 + 0.27 = 1.37$$

which corresponds within the limits of experimental error.

The result from the $i-I$ curves seems less reliable as that from the

¹⁾ R. B. BRODE, Proc. Roy. Soc. **125**, 1929, p. 134.

i-*D* curves as for the weak lines we could not work in the straight part of the intensity-density curve.

The different lines could not be obtained with exposures of the same time. This is no difficulty for the intensity-current curves but the density method cannot be used in such a case; we have for that reason less points on the *D*-*i* curves than for the *I*-*i* curves.

In the further work we therefore have no longer used all the mercury lines but only one of the stronger lines and used for this line the *D*-*i* curves. The work of finding α was with this method much less laborious as no density marks had to be printed on the plates and at the same time a sufficient accuracy could be obtained. Fig. 4 represents the

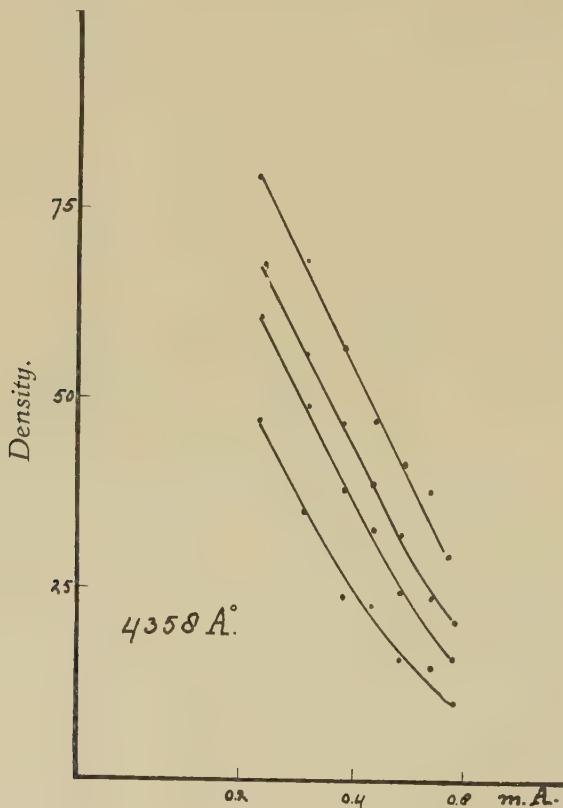


Fig. 4.

Anode current.

result for 30 V electrons for the 4358 line at a temperature of 38.65 C. (Hg. pressure 0.0057). The value obtained for α is $1.18 \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$. Using BRODE's value for α_{Hg} we get for

$$0.1 \alpha_{\text{He}} = 1.18 - 0.30 = 0.88 \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}.$$

The value for the active diameter that we obtain 8.8, compared with

the RAMSAUER value 8.5 is in very good agreement. From measurements at a temperature of 48.35 (Hg pressure 0.012) we found as a value for $\alpha = 1.58$. Using the equations for α as expressed in the pressure of He and Hg we get for

$$\alpha_{He} = 8.2 \text{ cm}^2/\text{cm}^3$$

and

$$\alpha_{Hg} = 63 \text{ cm}^2/\text{cm}^3 \text{ for } 30 V.$$

Which is in a fair agreement with the values of RAMSAUER and BRODE.

We due very much thanks to Mr. A. HAUER, cand. phil. for his kind assistance in this work.

Chemistry. — *Minjak Pelandjau*, the exudation from the Wood of *Pentaspadon Motleyi* Hook f. By P. VAN ROMBURGH, A. G. VAN VEEN and A. J. HAAGEN SMIT. (Third communication.)

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

In our last paper on this subject¹⁾ we suggested that the hydrocarbon we isolated, when catalytic hydrogenation of the phenol (obtained by decarboxylation of pelandjaic acid) was carried to completion, may contain a methyl-group in the benzene nucleus. This view is supported by the following experiment.

In order to split off the hydroxyl-group of the tetrahydrophenol, it was distilled over zinc dust. In the distillate we found in small quantities, however, *a*-methylnaphthalene. The reduction of the hydroxylgroup has evidently been accompanied by a ringclosure and the elimination of the aliphatic side-chain.

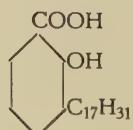
Distillation of the original phenol over zinc dust gave better results. From the distillate we could obtain, on adding an alcoholic solution of picric acid, a very good yield of picrates which proved to be a mixture of naphthalene- and methylnaphthalene picrate.

As the phenol used in this reaction was obtained by heating the liquid part of "minjak pelandjau", one cannot but acknowledge the presence of two different acids in the original exudate.

In order to ascertain the structure of either of those acids we started from pure tetrahydro-pelandjaic acid. It was hydrogenated to decahydro-acid. This was heated with zinc chloride in order to split off carbon dioxide. The crude distillate, when submitted to complete catalytic hydrogenation, yields a solid hydrocarbon m.p. 34—35°, which proved to be identical with heptadecyl-cyclohexane.

From the unsaturated hydrocarbon, obtained by heating the decahydrophenol with zinc chloride we succeeded in preparing, by catalytic hydrogenation, a saturated hydrocarbon which could also be identified as heptadecyl-cyclohexane.

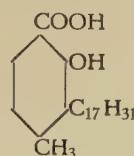
We must therefore assign to the solid acid (m.p. 25°) the structure :



¹⁾ These Proc. 23, 589 (1930).

This formula, except for the difference of the side-chain, is in accordance with the formula proposed by JONES and SMITH¹⁾ for pentaspadonic acid.

The structure of the liquid acid must be represented as follows:



Distillation of decarboxylated tetrahydropelandjaic acid with zinc dust.

The phenol derived from pelandjaic acid was hydrogenated with platinum black, without special catalytic precautions and in a large quantity of ethyl acetate to prevent the formation of the decahydro-product or of an hydrocarbon. Slowly two molecules of hydrogen were taken up, when the hydrogenation stopped. The tetrahydrophenol melted at 58—59°.

In order to split off the hydroxyl-group 1 gram of the tetrahydrophenol was distilled over zinc dust. When fractionated, the dark yellow distillate gave the following fractions:

1. 0.2 g. boiling at \pm 70° (15 mm)
2. 0.25 g. \pm 170° (15 mm)
3. 0.2 g. \pm 200° (0.7 mm)

Fraction 1 produced with picric acid a yellow picrate, m.p. 139—140° after one recrystallisation from alcohol. Further crystallisations did not raise the melting point. A mixed melting point determination with picrate of α -methyl-naphtaline caused no depression. With picrate of naphtalene: mixed melting point 134°. The hydrocarbon was regenerated with potassium hydroxide solution and converted into the styphnate, m.p. 135°; no depression with the styphnate of α -methylnaphtalene.

Fraction 2 gave na picrate and contains probably the hydrocarbon split off in the reaction.

Fraction 3 contains the product free from OH-groups as was shown by the ZEREWITINOFF method.

These results led us to conclude that pelandjaic acid contains a methyl-group in the benzene nucleus.

Distillation of the original phenol with zinc dust.

In the same manner as above the original phenol was distilled over zinc dust. The naphtalenes formed in this reaction were distilled at 760 mm and gave the following fractions:

1. 0.5 g. boiling at 170—235°
2. 0.5 g. 235—240°
3. 0.3 g. 240—300°

¹⁾ Proc. Royal Soc. of Queensland 41 N°. 6, 73 (1929).

The residue was distilled at 13 mm and gave 0.5 g boiling at 200—250°.

Fraction 1 was boiled for 24 hours with nitric acid (1.2); a heavy oil separated, and from the aqueous solution a small quantity of crystals melting at 170° could be obtained. They gave with sulphuric acid and resorcinol the fluorescein reaction.

Fraction 2 was treated with potassium dichromate and sulphuric acid. No formation of iso- or terephthalic acid was observed.

Fraction 3 contains the napthalenes and gave with picric acid a considerable quantity of picrates, which proved to be a mixture of napthalene- and methylnaphthalene picrate. Recrystallisation from alcohol gave crystals of α -methylnaphthalene picrate. Picric acid determination: Found 61.3 Calc. for methylnaphthalene picrate 61.7.

From the alcoholic mother-liquors a picrate was isolated melting unsharp from 142—150°. After three crystallisations m.p. 145—150°, chiefly at 150°.

Picric acid determination: Found 64.9 Calc. for napthalene picrate 64.2.

The remarkable results obtained with the zinc dust distillation made it necessary to determine which formula was to be given for the pure crystallised acid of the "minjak pelandjau".

For that purpose we used the purified tetrahydroacid which had been converted into the decahydro-acid. On heating this product carbon dioxide was evolved. Only the temperature of the decarboxylation was higher (330—350°) than in the case of the nonhydrogenated acid and the reaction was accompanied by a dehydration.

The products formed in this process boiled at 240—250° (15 mm). The oily liquid gave a strong reaction with tetranitromethane. It was, without further treatment, hydrogenated as strongly as possible with platinum oxide in acetic acid, in order to reduce the OH group of the decahydro-phenol. Quickly one molecule of hydrogen was absorbed and after inoculation with a crystal of heptadecyl-cyclohexane a crystalline product was obtained melting at 33°. A mixed melting point determination of the products showed no depression (with nonadecyl cyclohexane m.p. 36° a depression of 6° was noted).

Whereas isomerides eventually occurring, might remain in the mother-liquors, during the preparation of the pure tetrahydropelandjaic acid, we treated the decahydrophenol¹⁾ with zinc chloride in order to split off water²⁾. The unsaturated hydrocarbon formed in this reaction (b.p. 240° 15 mm) was hydrogenated with platinumoxide in acetic acid. Quickly 1 mol. of hydrogen was absorbed. The product formed in this reaction boiled at 240—241° (15 mm) and proved to be nearly pure heptadecyl cyclohexane (m.p. 32—33°, after recrystallisation 34—35°). It gave no m.p. depression with the synthetical product nor with the hydrocarbon obtained in the reaction mentioned above.

¹⁾ These Proc. 23, 591 (1930).

²⁾ These Proc. 23, 592 (1930).

On the contrary it gave depressions with closely related hydrocarbons viz. octadecyl- and nonadecyl-cyclohexane.

Therefore the crystallised acid obtained from "minjak pelandjau" must possess the structure given above.

We shall continue the study of the remaining part of the oil, in which the homologue with the methyl-group must be present. There seem to be some indications that the oil may contain some more analogous products possessing perhaps some relation to substances like thitsiol and laccol¹).

Organic-chemical Laboratory of the University.

Utrecht.

¹) B. 55, 192 (1922).

Chemistry. — Change of the Osmotic Water Attraction of a system of phases. I. By F. A. H. SCHREINEMAKERS.

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

In discussing the osmosis we have until now confined ourselves in most cases to systems, in which there was a liquid on both sides of the membrane. Now we shall consider the general osmotic system :

$$E | E' \dots \dots \dots \dots \dots \quad (1)$$

in which E (and E') can represent not only a single phase (e.g. a liquid or a vapour) but also a system of two or more phases;

e.g. a liquid + a vapour

or: a liquid + one or more solid substances, etc. As we assume that the phases of E (and E') are in equilibrium with one another, we shall call E (and E') an equilibrium.

We now take the osmotic system :

$$E(P) | E'(P') \quad \longleftarrow \delta a \dots \dots \dots \dots \quad (2)$$

in which the pressure is P on the left side of the membrane and P' on the right side. We now represent the Th. d. pot. (thermodynamical potential) of $E(P)$, viz. of the equilibrium E under the pressure P by Z and that of $E'(P')$ by Z' ; the total Th. d. pot. of system (2) then will be $Z + Z'$.

We now imagine that δa mol. water diffuse from E' towards E , so that the condition on the two sides of the membrane changes a little; then the Th. d. pot. will increase on the left side with :

$$\frac{dZ}{da} \cdot \delta a + \frac{1}{2} \frac{d^2Z}{da^2} \cdot \delta a^2 + \dots \dots \dots \dots \quad (3)$$

and on the right side of the membrane with :

$$-\frac{dZ'}{da} \cdot \delta a + \frac{1}{2} \frac{d^2Z'}{da^2} \cdot \delta a^2 - \dots \dots \dots \dots \quad (4)$$

it is clear that (3) obtains for the pressure P and (4) for the pressure P' . So the Th. d. pot. of the entire system increases with :

$$\left(\frac{dZ}{da} - \frac{dZ'}{da} \right) \delta a + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2Z}{da^2} + \frac{d^2Z'}{da^2} \right) \delta a^2 + \dots \dots \dots \quad (5)$$

As this total Th. d. pot. may decrease or remain constant only, δa must, therefore, satisfy :

$$\left(\frac{dZ'}{da} - \frac{dZ}{da} \right) \delta a - \frac{1}{2} A \cdot \delta a^2 \dots \equiv 0 \dots \dots \dots \quad (6)$$

in which, as we shall see further on, A is positive.

In deducing all this we have assumed that with the diffusion of δa mol. water the W -amount of the membrane does not change; with real membranes, however, it does change. When, however, the membrane is small with respect to the quantities of both equilibria, this change will generally play only a part of minor importance; we shall refer to this later on.

In (2) we have assumed that the pressure remains constant on the two sides of the membrane. In the osmotic system:

$$E(V) | E'(V') \quad \longleftarrow \delta a \quad \dots \dots \dots \quad (7)$$

the equilibrium E , however, has been shut into a space with a constant volume V and the equilibrium E' in a space with a constant volume V' . Then the pressure in these spaces may change continually during the osmosis. If we represent the free energy of E and E' (in the volumes V and V') by ψ and ψ' , then the total free energy will, therefore, be $\psi + \psi'$. When δa mol. water now diffuse from E' towards E , then we find that δa must satisfy:

$$\left(\frac{d\psi'}{da} - \frac{d\psi}{da} \right) \delta a - \frac{1}{2} B \delta a^2 \dots \equiv 0 \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

in which B is positive, as we shall see further on.

We can prove now that

$$\left(\frac{dZ}{da} \right)_p = \left(\frac{d\psi}{da} \right)_V \quad \dots \dots \dots \quad (9)$$

When the equilibrium E namely takes in δa mol. water and changes its pressure with δP , then we have:

$$dZ = \left(\frac{dZ}{da} \right)_p \delta a + \left(\frac{dZ}{dP} \right)_a dP = \left(\frac{dZ}{da} \right)_p \delta a + V dP \quad \dots \quad (10)$$

We now choose δa and δP in such a way that the total volume V remains unchanged; (10) then passes into:

$$\left(\frac{dZ}{da} \right)_V = \left(\frac{dZ}{da} \right)_p + V \left(\frac{dP}{da} \right)_V \quad \dots \dots \dots \quad (11)$$

We now have:

$$\left(\frac{dZ}{da} \right)_V = \left[\frac{d(\psi + PV)}{da} \right]_V = \left(\frac{d\psi}{da} \right)_V + V \left(\frac{dP}{da} \right)_V \quad \dots \quad (12)$$

(9) now follows from (11) and (12). We now put:

$$\xi = - \left(\frac{dZ}{da} \right)_p = - \left(\frac{d\psi}{da} \right)_V \quad \text{and} \quad \xi' = - \left(\frac{dZ'}{da} \right)_{p'} = - \left(\frac{d\psi'}{da} \right)_{V'} \quad (13)$$

Then it follows from (6) and (8) that δa in system (2) must satisfy:

$$(\xi - \xi') \delta a - \frac{1}{2} A \cdot \delta a^2 \dots \geq 0 \dots \dots \dots \quad (14)$$

and in system (7):

$$(\xi - \xi') \delta a - \frac{1}{2} B \cdot \delta a^2 \dots \geq 0 \dots \dots \dots \quad (15)$$

We now distinguish three cases.

1. $\xi > \xi'$. As δa^2 is small with respect to δa , the signs of (14) and (15) will be determined by the first term; so δa must satisfy:

$$(\xi - \xi') \delta a > 0 \dots \dots \dots \dots \quad (16)$$

As the coefficient of δa is positive, δa must consequently be positive also; so in (2) and (7) the water will diffuse in the direction of the arrow, viz. towards the left.

2. $\xi < \xi'$. We now see that δa must be negative; the water will now diffuse in (2) and (7) in a direction opposite to that of the arrow, viz. towards the right.

3. $\xi = \xi'$. Instead of (14) and (15) we now have:

$$-\frac{1}{2} A \cdot \delta a^2 \geq 0 \quad \text{and} \quad -\frac{1}{2} B \cdot \delta a^2 \geq 0 \dots \dots \dots \quad (17)$$

As A and B are positive and δa^2 is also positive for all values of δa , we can therefore only satisfy (17) by $\delta a = 0$. Then no water passes through the membrane, so that the two equilibria are in osmotic equilibrium.

We see from this that it depends on the values of ξ and ξ' (namely on their difference) whether water will diffuse and in what direction this will take place. We now call ξ the O.W.A. of the equilibrium E (under the pressure P or in the volume V) and ξ' the O.W.A. of the equilibrium E' (under the pressure P' or in the volume V'). We now may say, as it appears from 1, 2 and 3:

I. When the pressures or the volumina remain constant on both sides of a membrane $M(W)$,

then the water diffuses towards that side of the membrane, where the O.W.A. is greatest,

and no water diffuses when the O.W.A. is equal on both sides.

In preceding communications we have deduced corresponding rules for the case in which there is only one liquid on the two sides of the membrane.

The rules deduced above also obtain for an osmotic system:

$$E(P) | E'(V') \quad \longleftarrow \delta a \dots \dots \dots \quad (18)$$

in which the pressure remains constant on the one side of the membrane and the volume on the other side.

Before discussing the osmosis in similar systems, we shall first discuss the influence of different factors on the O.W.A. of an equilibrium.

Influence of pressure or volume on the O.W.A. of an equilibrium.

As we have seen above, the O.W.A. of an arbitrary equilibrium E (and consequently also that of a liquid or vapour) is determined by:

$$\xi = - \left(\frac{dZ}{da} \right)_p \text{ or } \xi = - \left(\frac{d\psi}{da} \right)_V \dots \dots \dots \quad (19)$$

From this follows:

$$d\xi = - \left(\frac{dV}{da} \right)_p dP \text{ and } d\xi = + \left(\frac{dP}{da} \right)_V dV \dots \dots \quad (20)$$

From this follows:

II^a. When we increase the pressure of an equilibrium (dP pos.), then its O.W.A. will decrease, when the volume increases with the absorption of water (the pressure remaining constant).

II^b. When we diminish the volume of an equilibrium (dV neg.) then its O.W.A. will decrease, when the pressure increases (the volume remaining constant).

Between these two changes of the O.W.A. the relation:

$$\frac{d\xi}{dV} = \left(\frac{dP}{dV} \right)_a \cdot \frac{d\xi}{dP} \dots \dots \dots \dots \quad (21)$$

exists.

Later on we shall refer to this relation and the preceding ones.

Influence of the absorption (emission) of water on the O.W.A. of an equilibrium.

When an equilibrium is in a stable condition, the Th. d. pot. must remain constant or increase a little with every small internal change, taking place at constant T and P . We now suppose all phases of this equilibrium divided by a membrane into two equal parts, which we shall call E ; then we have the osmotic system:

$$E(P) | E(P) \quad \longleftarrow \delta a \dots \dots \dots \quad (22)$$

in which the pressure is equal on both sides. When δa mol. water now diffuse towards the left, the Th. d. pot. will increase on the left side with:

$$\frac{dZ}{da} \delta a + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2Z}{da^2} \right) \delta a^2 + \dots \dots \dots \quad (23)$$

and on the right side of the membrane with:

$$- \frac{dZ}{da} \delta a + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2Z}{da^2} \right) \delta a^2 - \dots \dots \dots \quad (24)$$

As the total Th. d. pot. now increases with

$$\frac{d^2Z}{da^2} \cdot \delta a^2 + \dots \dots \dots \dots \quad (25)$$

it follows that the coefficient of δa^2 must be positive or (in special cases) zero. As:

$$\xi = - \left(\frac{dZ}{da} \right)_p \text{ and } \left(\frac{d\xi}{da} \right) = - \left(\frac{d^2 Z}{da^2} \right)_p \dots \dots \dots \quad (26)$$

follows:

$$\left(\frac{d\xi}{da} \right)_p \equiv 0 \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (27)$$

If instead of (22) we take the osmotic system

$$E(V) | E(V) \quad \longleftarrow \delta a \dots \dots \dots \quad (28)$$

in which the volume is equal on both sides of the membrane, then we find:

$$\left(\frac{d\xi}{da} \right)_V \equiv 0 \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (29)$$

If we take an equilibrium the pressure of which remains constant, "P const." and an equilibrium, the volume of which remains constant, "V const." then we may say:

III^a. when an equilibrium (P const.) takes in water, its O.W.A. will decrease; only in the special case that all phases keep the same composition, the O.W.A. will remain unchanged.

III^b. when an equilibrium (V const.) takes in water, its O.W.A. will decrease; only in special cases the O.W.A. will remain unchanged.

Between the changes of the O.W.A. mentioned in III^a. and III^b. the relation

$$\left(\frac{d\xi}{da} \right)_V = \left(\frac{d\xi}{da} \right)_p + \left(\frac{dP}{dV} \right)_a \cdot \left(\frac{dV}{da} \right)_p \dots \dots \dots \quad (30)$$

exists. In order to deduce it we suppose that an equilibrium takes in δa mol. water, the pressure changing with dP at the same time; we then have:

$$d\xi = \left(\frac{d\xi}{da} \right)_p da + \left(\frac{d\xi}{dP} \right)_a dP \dots \dots \dots \quad (31)$$

We now imagine δa and dP chosen in such a way that the total volume remains constant; then (31) passes into:

$$\left(\frac{d\xi}{da} \right)_V = \left(\frac{d\xi}{da} \right)_p + \left(\frac{d\xi}{dP} \right)_a \cdot \left(\frac{dP}{da} \right)_V \dots \dots \dots \quad (32)$$

which with the aid of (20) passes into:

$$\left(\frac{d\xi}{da} \right)_V = \left(\frac{d\xi}{da} \right)_p - \left(\frac{dV}{da} \right)_p \cdot \left(\frac{dP}{da} \right)_V \dots \dots \dots \quad (33)$$

We also have:

$$dP = \left(\frac{dP}{da}\right)_V da + \left(\frac{dP}{dV}\right)_a dV \dots \dots \dots \quad (34)$$

If we now choose δa and δV in such a way that the pressure does not change, so that $dP = 0$, then follows:

$$0 = \left(\frac{dP}{da}\right)_V + \left(\frac{dP}{dV}\right)_a \cdot \left(\frac{dV}{da}\right)_P \dots \dots \dots \quad (35)$$

With the aid of this (33) passes into (30). As $(dP/dV)a$ is always negative or zero, it follows:

III^c with the absorption of an equal quantity of water the O.W.A. in III^a will generally decrease more than (and in special cases as much as) the O.W.A. in III^b.

The change of the O.W.A. of a liquid or vapour.

Before applying these considerations to an arbitrary equilibrium, we shall first discuss the change of the O.W.A. of a single homogeneous phase, viz. of a liquid or vapour.

When a liquid (vapour) takes in water, the pressure remaining constant, we may assume that its volume will increase; when this liquid (vapour) takes in water, the volume remaining constant, its pressure will increase. So for a liquid (vapour) obtains:

$$\left(\frac{dV}{da}\right)_P > 0 \quad \text{and} \quad \left(\frac{dP}{da}\right)_V > 0 \dots \dots \dots \quad (36)$$

It now follows from (20) and also from II^a and II^b:

IV^a when we increase the pressure of a liquid or vapour, its O.W.A. decreases.

IV^b when we diminish the volume of a liquid or vapour, its O.W.A. decreases.

It is clear that these two results follow immediately from one another at once; the relation between both these changes has been determined by (21).

When we apply III^a, III^b and (30) to a liquid or a vapour, we find:

V^a when a liquid or a vapour (P const.) takes in water, its O.W.A. decreases.

V^b when a liquid or a vapour (V const.) takes in water, its O.W.A. decreases.

V^c with an absorption of the same quantity of water the O.W.A. in V^b decreases more than in V^a.

We may also deduce V^b and V^c in the following way.

1. We first cause a liquid (vapour) to take in water, its pressure remaining constant; then its O.W.A. will decrease according to V^a.

2. this liquid (vapour) has increased its volume; if by increase of pressure we reduce this greater volume once more to the original volume, the O.W.A. will decrease again according to IV^a.

So in V^b there are two causes, which diminish the O.W.A., namely the absorption of the water and the increase of pressure; from this it not only follows that the O.W.A. decreases in V^b , but also that it will decrease more in V^b than in V^a .

If we represent the Th. d. pot. of one quantity of liquid (vapour) by ζ , we have for n quantities: $Z = n\zeta$. When these n quantities take in δa mol. water under constant pressure, we have:

$$dZ = (n + \delta a) \left(\zeta + \frac{d\zeta}{dw} dw \right) - n\zeta \dots \dots \dots \quad (37)$$

Herein $\frac{d\zeta}{dw} dw$ represents the total (not the partial) change of the ζ when the W -amount of the liquid changes with dw and the ratio of the amounts of other substances remains constant; we shall refer to this later on. If we represent the W -amount of the liquid (vapour) by w , we have:

$$dw = \frac{nw + \delta a}{n + \delta a} - w = \frac{1 - w}{n + \delta a} \cdot \delta a \dots \dots \dots \quad (38)$$

(37) now passes into:

$$dZ = \left[\zeta + (1 - w) \frac{d\zeta}{dw} \right] \delta a \dots \dots \dots \quad (39)$$

From this follows:

$$\xi = -\xi - (1 - w) \frac{d\zeta}{dw} \dots \dots \dots \quad (40)$$

If we represent by ψ the free energy of one quantity of liquid (vapour), we have for the total free energy ψ_t of n quantities: $\psi_t = n\psi$. When these n quantities take in δa mol. water, we have:

$$d\psi_t = (n + \delta a) \left(\psi + \frac{\partial\psi}{\partial v} dv + \frac{d\psi}{dw} dw \right) - n\psi \dots \dots \quad (41)$$

in which dv is the change of the volume v of one quantity of liquid (vapour). If we keep the total volume constant, then is:

$$(n + \delta a) (v + dv) = nv \dots \dots \dots \quad (42)$$

From this follows:

$$dv = -\frac{v}{n + \delta a} \cdot \delta a \dots \dots \dots \quad (43)$$

With the aid of (38) and (43), (41) passes into:

$$d\psi_t = \left[\psi - v \frac{\partial\psi}{\partial v} + (1 - w) \frac{d\psi}{dw} \right] \delta a \dots \dots \quad (44)$$

From this follows:

$$\xi = -\psi + v \frac{\partial \psi}{\partial v} - (1-w) \frac{d\psi}{dw} \dots \dots \dots \quad (45)$$

As

$$\frac{\partial \psi}{\partial v} = -P \quad \text{and} \quad \left(\frac{d\psi}{dw} \right)_v = \left(\frac{d\xi}{dw} \right)_P \dots \dots \dots \quad (46)$$

it follows that (40) and (45) are equal, which is also in accordance with (13). From (40) follows:

$$\left(\frac{d\xi}{da} \right)_P = - (1-w) \frac{d^2 \xi}{dw^2} \cdot \frac{dw}{da} \dots \dots \dots \quad (47)$$

which with the aid of (38) passes into:

$$\left(\frac{d\xi}{da} \right)_P = - \frac{(1-w)^2}{n} \cdot \frac{d^2 \zeta}{dw^2} \dots \dots \dots \quad (48)$$

from which also follows what has been said in IV.

If we represent the composition of a liquid or a vapour by:

$$x \text{ mol } X + y \text{ mol } Y + \dots + w \text{ mol } W \dots \dots \quad (49)$$

in which $w = 1 - x - y \dots$, then is:

$$\frac{d\xi}{dw} = \frac{d\xi}{dx} \cdot \frac{dx}{dw} + \frac{d\xi}{dy} \cdot \frac{dy}{dw} + \dots \dots \dots \quad (50)$$

As with this change of the W -amount the ratio of the amounts of the other substances remains constant, we find:

$$\frac{dx}{dw} = -\frac{x}{1-w} ; \quad \frac{dy}{dw} = -\frac{y}{1-w} ; \text{ etc.} \dots \dots \dots \quad (51)$$

If we substitute these values in (50) then (40) passes into:

$$\xi = -\zeta + x \frac{d\xi}{dx} + y \frac{d\xi}{dy} + \dots \dots \dots \quad (52)$$

which is in accordance with the values of the O.W.A. of a liquid or a vapour, found previously.

(To be continued).

Leiden, Lab. of Inorg. Chemistry.

Biology. — STEMPELL's Versuche zum Nachweis der mitogenetischen Strahlung mit Hilfe der LIESEGANG'schen Ringe. Von G. VAN ITERSON Jr. und Frl. C. HOMAN VAN DER HEIDE.

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

Wer bekannt ist mit den Schwierigkeiten, die verknüpft sind mit dem Nachweis der mitogenetischen Strahlung mittels Mitosen, wird sicher mit grossem Interesse die Publikation von W. STEMPELL „Nachweis der von frischen Zwiebelsohlenbrei ausgesandten Strahlen durch Störung der LIESEGANG'schen Ringbildung“ (1) gelesen haben. Dadurch schien sich ein einfacher Weg zu öffnen, eine solche Strahlung nachweisen zu können.

Im Laboratorium für Technische Botanik der Technischen Hochschule in Delft, haben wir dann auch, bald nachdem wir mit der Publikation STEMPELL's bekannt wurden, Versuche angestellt um seine Beobachtungen zu kontrollieren und auf ihre Tragweite zu untersuchen. Es gelang uns, ohne Schwierigkeiten, die Anweisungen von STEMPELL folgend, die von ihm beobachtete Erscheinung zu reproduzieren.

Abb. 2 zeigt die Störungen der LIESEGANG'schen Ringe, die bei einem Versuch mit Zwiebelsohlenbrei, ganz vorschriftsmässig nach STEMPELL angestellt, sichtbar wurden.

Wir bringen hier in Erinnerung, dass STEMPELL eine Zinkplatte mit Spalt über die sich bildenden Ringe aufstellt. Auf den Spalt legt er Cellophanpapier und darauf wird der Zwiebelsohlenbrei (bereitet nach Vorschrift von REITER und GÁBOR) ausgebreitet. Das Cellophanpapier und der Zwiebelsohlenbrei werden 5 bis 6 mal stündlich erneuert. Die Ringe werden mittels einer Lösung von Silbernitrat in Gelatine die Ammonchromat enthält, hervorgerufen.

Schon bei unseren ersten Versuchen bemerkten wir, dass bei der Erneuerung des Cellophanpapieres die Unterseite dieses Papieres deutlich nach Zwiebeln roch. Es war kein Zweifel möglich, dass diese Emanation auch die Gelatine erreicht hatte. Unsere weiteren Beobachtungen erregten in uns auch bald die Überzeugung, dass bei den ursprünglichen Versuchen von STEMPELL die flüchtigen Stoffe eine Rolle gespielt hatten.

Seitdem gelangte die Publikation von W. W. SIEBERT (2) in unsere Hände und bald darauf kam auch die zweite Mitteilung von STEMPELL (3) in unseren Besitz.

SIEBERT kam durch seine Experimente zu der Schlussfolgerung, dass die Störung der Ringe, welche STEMPELL beobachtet hatte, *nicht* durch mitogenetische Strahlung zu erklären sei, doch dass sie durch chemischen Einfluss, von flüchtigen Stoffen des Zwiebelbreies herrührend, verursacht war.

STEMPELL (der damals noch nicht mit der Mitteilung von SIEBERT bekannt war) hat seiner zweiten Publikation gemäss, seitdem die Überzeugung gewonnen, dass seine ersten Resultate *teilweise* auf chemischen Einflüssen beruhten, die von frischem Zwiebelsohlenbrei ausgehen. Er meint jedoch, dass die *Gesamtsumme* seiner Beobachtungen nur erklärt werden kann, wenn man *daneben* noch die Mitwirkung von mitogenetischen Strahlen annimmt. Eines der kräftigsten Argumente, die er dafür anführt, ist das Auftreten von — sei es auch schwachen — Störungen in der Ringbildung, wenn der Spalt mit einem 0.3 mm dicken Uviolglas gasdicht abgeschlossen wurde, auf welchen Glas dann der Sohlenbrei ausgebreitet wurde.

Einer von den Autoren der gegenwärtigen Abhandlung genoss den Vorzug am 5. August 1930 einem Vortrag von Prof. STEMPPELL, auf dem *Congressus Internationalis Cytologicus* in Amsterdam, über seine Versuche beizuwohnen. STEMPPELL beharrte dabei mit Entschiedenheit auf seinem oben angegebenen Standpunkt, selbst nachdem von russischer Seite eine kurze Mitteilung (worin jedoch keine Versuche beschrieben wurden) vorgelesen war, worin die Autoren die Versuche STEMPPELL's für unbrauchbar zum Nachweis von mitogenetischer Strahlung erklärten.

Von Dr. T. REITER wurde jedoch bei derselben Gelegenheit mitgeteilt, dass auch er eine Störung der Ringbildung bei Anwendung eines Quarzplättchens beobachtet hatte. Er teilte also den Standpunkt von STEMPPELL.

Unter diesen Umständen glauben wir es erwünscht, auch die Resultate unserer Versuche zu veröffentlichen, wobei wir gleich erwähnen, dass wir zu der Überzeugung kamen, dass die beobachteten Störungen *nicht* auf mitogenetische Strahlung zurückzuführen sind.

Zuerst beschreiben wir hier einen Versuch, aus dem (unserer Meinung nach noch besser als aus den Versuchen von SIEBERT und aus denjenigen von STEMPPELL) hervorgeht, dass gasförmige Produkte, welche von Zwiebelsohlenbrei ausgehen, Störungen in der Ringbildung verursachen.

Abb. 1. gibt die von uns gewählte Anordnung des Versuches wieder. Man wird aus dieser Abbildung sehen, dass wir den Zwiebelsohlenbrei auf ein Glasplättchen, das ungefähr 7 mm über dem Spalt aufgestellt wurde,

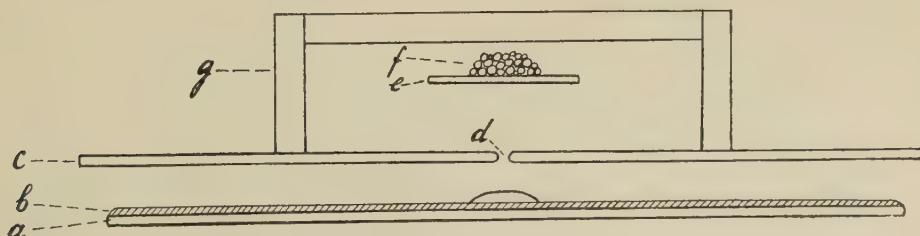


Abb. 1.

- a. Glasplatte, b. Gelatineschicht, worin sich die LIESEGANG'schen Ringe bilden, c. Zinkplatte, mit: d. 1 mm breitem und 53 mm. langem Spalt,
- e. Glasplättchen von 0.8 mm Dicke, 15 mm Breite und 51 mm Länge,
- f. Zwiebelsohlenbrei, g. umgekehrte Glasdose.

ausbreiteten. Über dem Sohlenbrei brachten wir eine Glasdose an. Das Ganze wurde in einer (hier nicht abgebildeten) Petrischale aufgestellt, worin ein wenig Wasser gebracht war. Übrigens war der Versuch nach den Vorschriften von STEMPPELL gemacht. Der Zwiebelsohlenbrei wurde während des Versuches halbstündlich erneuert. Der Brei wurde von sehr jungen Zwiebelchen (ungefähr 8 mm im Durchmesser) bereitet.

Abb. 4 zeigt das Resultat dieses Versuches, der einige Male wiederholt wurde. Man ersieht aus dieser Figur, dass eine deutliche Störung der Ringbildung unter dem Spalt stattfand; sie ist von derselben Form als die Störungen, welche ursprünglich von STEMPPELL erhalten wurden.

Wurde der Versuch nun derart abgeändert, dass das Glasplättchen auf die Zinkplatte gelegt wurde (wobei mittels Vaselin für einen gasdichten Verschluss Sorge getragen wurde), so blieb die Störung der Ringe aus. Dieses ist aus Abb. 3 ersichtlich. Hieraus geht hervor, dass die Glasplatte die störende Emanation nicht hindurchtreten lässt.

Der Umstand, dass im vorigen Versuch wohl eine Störung in der Ringbildung eintrat (obwohl der Brei auch dabei auf ein Glasplättchen ausgedehnt war) muss unserer Meinung nach unbedingt ausschliesslich auf den Einfluss irgend eines gasförmigen Stoffes zurückgeführt werden. Wollte man eine Strahlung, die vom Brei herrühren sollte, als Ursache der Störung ansehen, so wäre man gezwungen, anzunehmen, dass ein Teil der Strahlen (die ja nicht durch das Glasplättchen dringen) nach wiederholten Reflexionen gegen die Wand der Dose und gegen die Zinkplatte durch den Spalt passiert war. Dieser Teil sollte dann noch von genügender Intensität sein um eine ebenso starke Störung zu verursachen als bei dem Versuch mit Cellophanpapier beobachtet wurde. Diese Annahme kann man ruhig fallen lassen.

Wir haben nun weiter die Versuche STEMPPELL's, welche er in seiner zweiten Abhandlung beschreibt, wiederholt, welche Versuche beweisen sollten, dass auch die mitogenetische Strahlung einen Einfluss auf die Ringbildung ausübt.

Zu diesem Zwecke deckten wir, genau so wie STEMPPELL es getan hatte, den Spalt in der Zinkplatte mit einem Deckglas aus Quarz (das senkrecht zur Kristallachse geschliffen worden war) oder mit einem Uviolglas ab. Auf diese Gläser wurde dann der Zwiebelsohlenbrei ausgebreitet.

Die beiden Deckgläser wurden uns von der Firma CARL ZEISS in Jena geliefert. Das Deckglas von Quarz hatte eine Dicke von 0.5 mm, das von Uviolglas von 0.25 mm. Die ungleichen Dimensionen dieser Gläser zwangen uns zu einer einigermassen verschiedenen Versuchsanordnung. Das rechteckige Deckglas aus Quarz (25×30 mm) legten wir mit der Diagonale (die 38 mm lang war) auf einen Spalt (von 35 mm Länge), welcher in der von STEMPPELL angegebenen Weise, also mitten in der Zinkplatte, angebracht worden war. Das rechteckige Uviolglas (20×30 mm) legten wir mit der Diagonale (35 mm) auf einen Spalt (von 30 mm Länge), welcher einseitig, von der Mitte ausgehend, in einer Zinkplatte angebracht

G. VAN ITERSON Jr. UND Fr. C. HOMAN VAN DER HEIDE: STEMPELL's VERSUCHE ZUM NACHWEIS DER MITO-
GENETISCHEN STRAHLUNG MIT HILFE DER LIESEGANG'sCHEN RINGE.

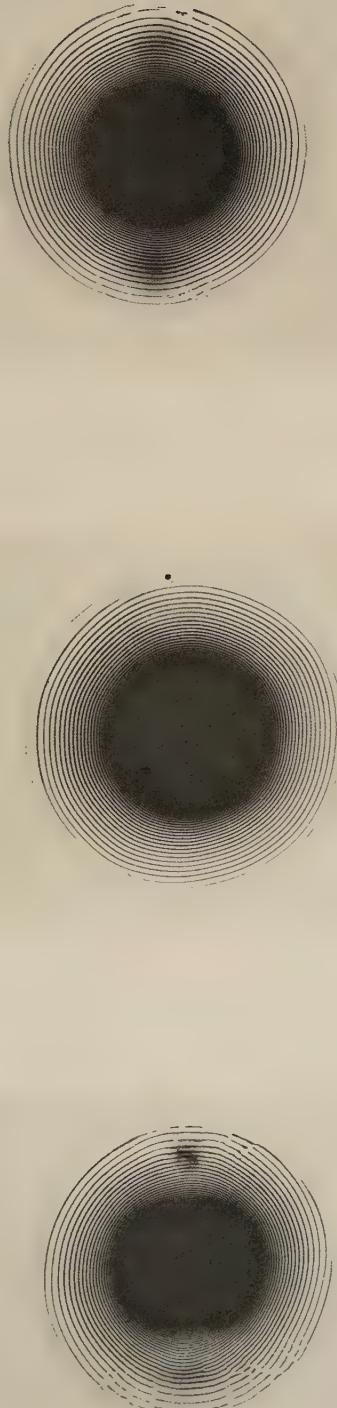


Abb. 2.
Gestörte Bildung der LIESEGANG'schen Ringe
unter einem Spalt, auf dem Cellophanpapier
mit Zwiebelsohnenbrei lag.

Abb. 3.
Ungestörte Bildung der LIESEGANG'schen Ringe
unter einem Spalt, auf dem ein Glaspätkchen
mit Zwiebelsohnenbrei direkt aufliegt.

Abb. 4.
Gestörte Bildung der LIESEGANG'schen Ringe
unter einem Spalt, über dem ein Glaspätkchen
mit Zwiebelsohnenbrei in einiger Entfernung
aufgestellt wurde.

worden war. Eine eventuelle Störung in der Ringbildung unter dem Spalt hätte sich also beim ersten Versuch zur rechten *und* zur linken Seite vom Mittelpunkt der LIESEGANG'schen Ringe, bei dem zweiten Versuch, nur an einer Seite des Mittelpunktes zeigen müssen.

Damit wir die Gläser bequem fortnehmen konnten, wurde ein kleines Glasstäbchen mit Hilfe von Deckglaskitt daran befestigt. Die Gläser wurden ohne irgendein Klebemittel auf die Zinkplatte gelegt. Wie aus dem Nachstehenden hervorgeht, war der Verschluss so vollkommen genügend.

Der Zwiebelsohlenbrei wurde selbstverständlich wiederum regelmässig erneuert.

Immer wurde zu gleicher Zeit ein erster Kontroll-Versuch angestellt, wobei eine Zinkplatte mit einem Spalt ohne Deckung und ohne Zwiebelsohlenbrei gebraucht wurde, und ein zweiter Kontroll-Versuch, wobei auf den Spalt Zwiebelsohlenbrei auf Cellophanpapier gebracht wurde. Auch bei diesen Versuchen wurde der Brei regelmässig erneuert. Der erste Kontroll-Versuch hatte immer ein negatives, der zweite immer ein positives Resultat.

Weder wenn ein Deckglas aus Quarz gebraucht wurde, noch beim Gebrauch von Uviolglas haben wir je Störungen unter dem Spalt beobachtet, welche auch nur einigermassen der Wirkung von Strahlen, welche durch den Spalt hindurch getreten waren, hätten zugeschrieben werden können. Wenn dann und wann eine Störung unter dem Spalt auftrat, so waren auch Störungen sichtbar an Stellen, welche weit von dem Spalt entfernt waren und meistens in viel stärkerem Masse.

Es erscheint uns unnütz an dieser Stelle Photos zu reproduzieren; die meisten Bilder waren dem Bilde von Abb. 3 ähnlich.

Festgestellt sei noch, dass wir diese Versuche anstellten mit einem Zwiebelsohlenbrei, der bereitet wurde aus Zwiebeln, welche wir während einiger Zeit mit der Sohle ins Wasser gestellt und welche junge Wurzelspitzen gebildet hatten.

Die Versuche wurden im Monat September angestellt, welcher Monat für Versuche mit mitogenetischen Strahlen von Zwiebelwurzeln günstig zu sein scheint.

Es versteht sich von selbst, dass wir auch Versuche anstellten betr. der Bildung von LIESEGANG'schen Ringen im Dunkeln. Hat doch STEMPPELL angegeben, dass die mitogenetischen Strahlen im Dunkeln die Bildung der Ringe fördern. Uns ist es jedoch auch unter diesen Verhältnissen nicht gelungen, eine Wirkung von Zwiebelsohlenbrei durch Quarz oder Uviolglas hindurch auf die Ringbildung nachzuweisen.

Zum Schluss haben wir uns die Frage gestellt, worin die Erklärung der abweichenden Resultate STEMPPELL's zu suchen sei und weisen wir auf die Möglichkeit hin, dass er die Umstände, welche Einfluss auf die Ringbildung ausüben konnten, nicht genug berücksichtigt hat.

Eine spezielle Versuchsreihe zeigte uns, dass, ausser der Dicke der Gelatineschicht, die Grösse des Tropfens der Silbernitratlösung und die Qualität der Gelatine, besonders die Temperatur, die Luftfeuchtigkeit und

die Beleuchtung einen grossen Einfluss auf die Ringbildung ausüben. Kleine Veränderungen in den letzten Faktoren können dann und wann grossen Einfluss auf den Rhythmus, in dem die Ringe gebildet werden, ausüben, wie auch auf die Breite der dunklen und hellen Ringe und auf die Dichtigkeit und die Farbe des Niederschlages, aus welchem die dunklen Ringe gebildet werden.

Zieht man in Erwägung, dass das Bedecken der Gelatine mit einer Zinkplatte, worin ein Spalt angebracht worden ist, und auch das Ausbreiten des Breies auf Cellophanpapier oder auf ein Deckglas, auf mehrere dieser Faktoren Einfluss ausübt, so wird es einem klar, dass man sehr vorsichtig sein muss, wenn man auf die Mitwirkung von mitogenetischen Strahlen schliessen will.

Delft, September 1930.

LITERATUR.

1. W. STEMPPELL. Nachweis der von frischem Sohlenbrei ausgesandten Strahlen durch Störung der LIESEGANG'schen Ringbildung. Biol. Zentralblatt, **49**. Bd., 1929, S. 607—615.
2. WERNER W. SIEBERT. Das Stempell-Phänomen an den LIESEGANG'schen Ringen. Biochemische Zeitschrift **220**. Bd., 1930, S. 487—492.
3. W. STEMPPELL. Notiz über die Wirkung frischen Sohlenbreies auf die Bildung LIESEGANG'scher Ringe. Biol. Zentralblatt **50**. Bd., 1930, S. 248—251.

Mathematics. — *Eine Abbildung des vierfach unendlichen Systems der biquadratischen Raumkurven erster Art, welche durch fünf gegebene Punkte gehen und eine gegebene Doppelsekante haben, auf einen linearen vierdimensionalen Punktraum. Von J. W. A. VAN KOL. (Communicated by Prof. H. K. DE VRIES).*

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

§ 1. In einem linearen dreidimensionalen Raum R_3 betrachten wir das System der biquadratischen Raumkurven k^4 erster Art, welche durch fünf gegebene Punkte A_1, \dots, A_5 gehen und eine gegebene Doppelsekante b haben. Eine Abbildung dieses vierfach unendlichen Systems auf einen linearen vierdimensionalen Punktraum R_4 erhalten wir in folgender Weise. Nehmen wir in R_3 noch einen Punkt A an, so ist eine beliebige Kurve k^4 zu betrachten als Schnittkurve einer Fläche zweiter Ordnung ω_1^2 , welche durch A_1, \dots, A_5 und b geht und einer Fläche zweiter Ordnung ω_2^2 , welche durch A, A_1, \dots, A_5 geht. In R_4 nehmen wir eine beliebige Ebene α und einen beliebigen Punkt M an. Wir beziehen den Büschel der Flächen ω_1^2 projektiv auf den Büschel der linearen dreidimensionalen Räume mit der Trägerebene α und das Gebüsch der Flächen ω_2^2 projektiv auf das System der ∞^3 durch M gehenden Strahlen, kürzer gesagt auf den Strahlenstern M . Einer Kurve k^4 ordnen wir den Schnittpunkt des Raumes, welcher der durch k^4 gehenden Fläche ω_1^2 entspricht, mit dem Strahle, welcher der durch k^4 gehenden Fläche ω_2^2 entspricht, zu. Diese Abbildung ist offenbar eineindeutig.

§ 2. α ist eine singuläre Ebene; ein beliebiger Punkt P von α ist das Bild des Systems der ∞^1 Kurven k^4 , welche auf der dem Strahle MP entsprechenden Fläche ω_2^2 erzeugt werden durch den Büschel der Flächen ω_1^2 .

Der singuläre Punkt dritten Ranges M ist das Bild der ∞^3 Kurven k^4 , welche auf der dem Raum Ma entsprechenden Fläche ω_1^2 liegen.

Der Büschel der Flächen ω_1^2 und das Gebüsch der Flächen ω_2^2 haben eine Fläche ω_{12}^2 gemein. Auf ω_{12}^2 liegen ∞^3 Kurven k^4 , welche sich abbilden in den Schnittpunkt S des Raumes, welcher ω_{12}^2 betrachtet als eine Fläche ω_1^2 entspricht, mit dem Strahle, welcher ω_{12}^2 betrachtet als eine Fläche ω_2^2 entspricht.

Es gibt also noch einen singulären Punkt dritten Ranges S , welcher das Bild ist der ∞^3 auf ω_{12}^2 liegenden Kurven k^4 .

§ 3. Jede Gerade, welche durch M geht und α trifft, ist die Bildgerade einer Kurve k^4 . Es gibt also ∞^2 singuläre Kurven k^4 . Diese Kurven werden auf der dem Raume $M\alpha$ entsprechenden Fläche ω_1^2 erzeugt durch den Bündel von Flächen ω_2^2 , welcher dem dreidimensionalen Strahlenstern $M\alpha$ entspricht.

§ 4. Betrachten wir das System Σ_1 der ∞^2 Kurven k^4 , welche durch einen gegebenen Punkt P gehen. Σ_1 wird auf der Fläche ω_1^2 , welche durch A_1, \dots, A_5, P und b geht, eingeschnitten durch den Bündel der Flächen ω_2^2 , welche durch A, A_1, \dots, A_5 und P gehen. Σ_1 wird also abgebildet auf die Schnittebene α_P der Räume, welche der genannten Fläche ω_1^2 und dem genannten Bündel von Flächen ω_2^2 entsprechen.

Das System der Kurven k^4 , welche durch einen gegebenen Punkt P gehen, wird abgebildet auf eine Ebene α_P , welche mit α eine Gerade gemein hat und nicht durch M und S geht.

Dass zwei Ebenen α_P und α_Q einen singulären Punkt gemein haben, ist im Einklang mit dem Satze, dass es im Allgemeinen keine biquadratische Raumkurve erster Art gibt, welche durch sieben gegebene Punkte geht und eine gegebene Doppelsekante hat.

§ 5. Es sei F_d die Bildfläche des Systems Σ_2 der Kurven k^4 , welche eine gegebene Doppelsekante d haben. Zur Bestimmung der Ordnung von F_d nehmen wir eine Ebene π an, welche mit α eine Gerade g gemein hat. Der dem dreidimensionalen Strahlenstern $M\pi$ entsprechende Bündel von Flächen ω_2^2 enthält eine Fläche ω_2^2 , welche durch die zwei Schnittpunkte von d mit der dem Raume $\pi\alpha$ entsprechenden Fläche ω_1^2 geht und auf dieser Fläche eine Kurve k^4 von Σ_2 einschneidet. Die Ebene π hat also mit F_d ausser α einen Punkt gemein. Weil der Büschel der Flächen ω_1^2 und der dem Strahlenbüschel Mg entsprechende Büschel von Flächen ω_2^2 auf d quadratische Punkteinvolutionen einschneiden, welche ein gemeinsames Paar haben, hat g mit F_d einen Punkt gemein. π hat also zwei Punkte mit F_d gemein. F_d ist daher eine Fläche zweiter Ordnung.

Das System der Kurven k^4 , welche eine gegebene Doppelsekante d haben, wird abgebildet auf eine Fläche zweiter Ordnung F_d , welche mit α eine Gerade gemein hat und durch M und S geht.

Wir bemerken noch, dass der lineare dreidimensionale Raum, der F_d enthält und also durch M geht, der Bildraum ist des Bündels der Flächen ω_2^2 , welche d in Punktpaaren der durch den Büschel der Flächen ω_1^2 eingeschnittenen Involution treffen.

Der nicht-singuläre Punkt, den F_d und α_P ausser einem singulären Punkt gemein haben, ist das Bild der Kurve k^4 , welche durch P geht und die Doppelsekante d hat. Diese Kurve ist bekanntlich die Schnittkurve von zwei Flächen zweiter Ordnung, welche beide durch A_1, \dots, A_5 und P gehen, während die eine b und die andere d enthält.

Der nicht-singuläre Punkt, den F_{d_1} und F_{d_2} ausser drei singulären Punkten gemein haben, ist das Bild der Kurve k^4 , welche die Doppelsekanten d_1 und d_2 hat.

§ 6. Es sei Ω_l der Bildraum des Systems Σ_3 der ∞^3 Kurven k^4 , welche eine gegebene Gerade l treffen. Eine beliebige Gerade g , welche α trifft, ist die Bildgerade des Systems der ∞^1 Kurven k^4 , welche auf der dem Raume g entsprechenden Fläche ω_1^2 eingeschnitten werden durch den dem Strahlenbüschel Mg entsprechenden Büschel von Flächen ω_2^2 . Durch jeden der zwei Schnittpunkte von l mit der genannten Fläche ω_1^2 geht eine Fläche des genannten Büschels. g hat also ausser α zwei Punkte mit Ω_l gemein. Ferner enthält jede Fläche ω_2^2 zwei Kurven k^4 von Σ_3 . Hieraus folgt erstens, dass α eine Doppellebene in Ω_l ist und zweitens, dass eine durch M gelegte Gerade mit Ω_l ausser M zwei Punkte gemein hat. Ω_l ist demnach ein biquadratischer Raum, der in M einen Doppelpunkt hat.

Eine durch S gelegte Gerade h ist die Bildgerade eines Systems von ∞^1 Kurven k^4 , welche erzeugt werden durch eine projektive Verwandtschaft zwischen den Büschel der Flächen ω_1^2 und einen Büschel von Flächen ω_2^2 , der ebenfalls die Fläche ω_{12}^2 enthält. Im Allgemeinen bilden die ∞^1 Kurven, welche erzeugt werden durch eine projektive Verwandtschaft zwischen zwei Büschel von Flächen zweiter Ordnung, eine biquadratische Fläche. In unserem Fall zerfällt diese Fläche in ω_{12}^2 und noch eine Fläche zweiter Ordnung. Weil diese Fläche von l in zwei Punkten getroffen wird, hat h mit Ω_l ausser S zwei Punkte gemein. Ω_l hat also auch in S einen Doppelpunkt¹⁾.

In § 8 wird es sich noch in einer andern Weise zeigen, dasz Ω_l in M und S Doppelpunkte hat.

Das System der Kurven k^4 , welche eine gegebene Gerade l treffen, wird also abgebildet auf einen biquadratischen Raum Ω_l , der in M und S Doppelpunkte hat und in dem α eine Doppellebene ist.

§ 7. Zwei Räume Ω_l und Ω_m haben ausser α eine Fläche $O_{l,m}$ zwölfter Ordnung gemein. $O_{l,m}$ ist offenbar die Bildfläche des Systems Σ_4 der ∞^2 Kurven k^4 , welche zwei gegebene Geraden l und m treffen. In derselben Weise wie in § 5 bestimmt man die Zahl der ausser α liegenden Schnittpunkte von $O_{l,m}$ mit einer Ebene, welche mit α eine Gerade gemein hat.

Das System der Kurven k^4 , welche zwei gegebene Geraden l und m treffen, wird abgebildet auf eine Fläche $O_{l,m}$ zwölfter Ordnung, welche in M und S vierfache Punkte hat und mit α eine Kurve achter Ordnung gemein hat.

Die vier nicht-singulären Punkte, welche die Ebene α_P und die Fläche $O_{l,m}$ ausser singulären Punkten gemein haben, sind die Bilder der vier

¹⁾ Diesen Beweis verdanke ich Dr. G. SCHAAKE.

Kurven k^4 , welche durch P gehen und l und m treffen und offenbar auf der Fläche zweiter Ordnung liegen, welche durch A_1, \dots, A_5, P und b geht.

Ausser singulären Punkten haben F_d und O_{lm} 8 und O_{lm} und O_{no} 48 Punkte gemein.

Es gibt also 8 Kurven k^4 , welche eine zweite gegebene Doppelsekante d haben und zwei gegebene Geraden l und m treffen und 48 Kurven k^4 , welche vier gegebene Geraden l, m, n und o treffen.

§ 8. Eine Fläche O_{lm} und ein Raum Ω_n haben ausser einer singulären Kurve in a eine Kurve k_{lmn} 32. Ordnung gemein, welche die Bildkurve ist des Systems Σ_5 der Kurven k^4 , welche drei gegebene Geraden l, m und n treffen. Auf einer beliebigen Fläche ω_1^2 liegen acht Kurven k^4 von Σ_5 . Hieraus folgt erstens, dass ein durch a gelegter linearer dreidimensionaler Raum mit k_{lmn} ausser a acht Punkte und also k_{lmn} mit a 24 Punkte gemein hat und zweitens, dass k_{lmn} in M und S achtfache Punkte und also Ω_1 in M und S Doppelpunkte hat.

Das System der Kurven k^4 , welche drei gegebene Geraden l, m und n treffen, wird abgebildet auf eine Kurve k_{lmn} 32. Ordnung, welche mit a 24 Punkte gemein hat und in M und S achtfache Punkte hat.

§ 9. In ähnlicher Weise lassen sich die Abbildungen von anderen Systemen untersuchen, z. B. von den Systemen der Kurven k^4 , welche 1, 2 oder 3 gegebene Ebenen berühren; welche eine gegebene Gerade treffen und 1 oder 2 gegebene Ebenen berühren u. s. w.

Die folgende Tabelle enthält Anzahlen, welche sich in dieser Weise bestimmen lassen oder oben schon gefunden sind:

$$\begin{array}{llll}
 P^7 B = 0 & P^6 B \nu^2 = 4 & P^5 B^2 \nu^2 = 8 & P^5 B \nu^4 = 48. \\
 P^6 B^2 = 1 & P^6 B \nu \varrho = 12 & P^5 B^2 \nu \varrho = 24 & P^5 B \nu^3 \varrho = 144. \\
 P^5 B^3 = 1 & P^6 B \varrho^2 = 36 & P^5 B^2 \varrho^2 = 72 & P^5 B \nu^2 \varrho^2 = 432. \\
 & & & P^5 B \nu \varrho^3 = 1296. \\
 & & & P^5 B \varrho^4 = 3888.
 \end{array}$$

P bedeutet die Bedingung, dass eine biquadratische Raumkurve erster Art durch einen gegebenen Punkt gehen soll, B die Bedingung, dass sie eine gegebene Doppelsekante haben soll, ν die Bedingung, dass sie eine gegebene Gerade treffen soll und ϱ die Bedingung, dass sie eine gegebene Ebene berühren soll.

Physics. — *Ultra Radiation (penetrating radiation). III. Annual variation and variation with the geographical latitude.* By J. CLAY. (Communicated by Prof. P. ZEEMAN).

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

§ 1. Since the last communication about the investigation of ultraradiation was made in December 1928, a series of measurements were made at Bandoeng to examine whether variations in the intensity of *ultraradiation* could be observed in the course of the year.

At present the term *ultraradiation* is used instead of *penetrating radiation*, since V. HESS, who contributed very much to the discovery of these rays, proposed to use the name of ultraradiation. By this name the origin of these rays is not mentioned, which at present has not yet been discovered and it is also left unexpressed whether the primary radiation is a β radiation or a γ radiation.

In the months of July, August, September and October only short series of measurements were made. From November 29th till August 23rd 1929 measurements were made regularly every day with only short interruptions of a few days. From November 29th till January 2nd the measurements were made with two instruments both protected on the bottom side and on the side walls by a 12 cm layer of lead, so that chiefly only rays from above could strike the instruments. From January 2nd one instrument was protected on all sides by an enclosing armour of iron of 8 cm to which at the bottom and on the sides 12 cm lead were added, at the upper side 4 cm lead, so that, according to the usual calculation, the upper covering corresponds to 10.6 cm lead or 12.9 cm iron.

By way of control the instruments were interchanged, e.g. from February 25th till March 2nd, July 28th and 29th, August 5th, 6th and 7th.

In the records the values found are given in ions per cm^3 per sec.

The instruments were mostly read at 7 p. m. and at 7 a. m. The sensibility of the instruments was such that this was possible without the potential becoming too low, nor was there any danger of getting below the potential of saturation. As a rule the discharge of instrument A was laying between 450 and 180 Volts, of instrument B between 350 and 140 Volts. KOLHÖRSTER¹⁾ has found, that at these potentials there is no fear of the current being unsaturated. Besides this could also be concluded from the fact that the same space of time was required for the first half of the decrease as for the second half.

¹⁾ W. KOLHÖRSTER, Phys. Zeitschrift, 31, p. 280, 1930.

During the time that the instruments were above uncovered, the variations in the curve are greater than for the armoured instrument from

Ultra Radiation 12:7:28 tot 23:8:29.

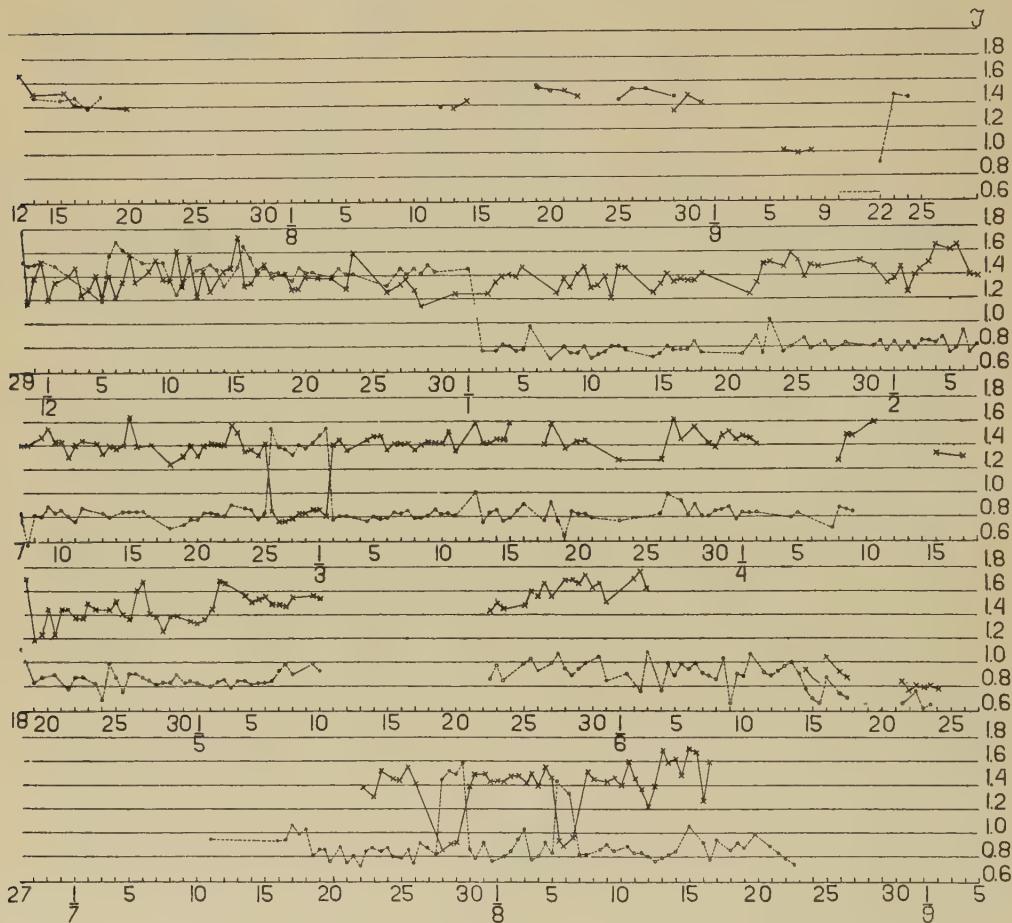


Fig. 1.

which ensues that these must have arisen through variations in the radiation. With the armoured instrument the mean deviation from January 2nd to Aug. 23rd is 0,04₂ I and with apparatus A 0,07₄ I, while it had already been established before that under equal circumstances apparatus A in consequence of its smaller residual ionization, presented smaller deviations than apparatus B.

It appears from the course of the data, that in May and June a considerable rise in the intensity occurred. Especially the rise found in the ionization chamber inside the armour is, of course, the most reliable. This remarkable increase in May and June deserves the more attention, because it has also been found two years before as was stated in the

first communication in 1927¹⁾) That this increase is real, is also corroborated by two data.

TABLE I.

Variation of the intensity of ultraradiation between July 1928 and September 1929.

Data	12 cm lead on bottom and side walls	Mean variation	10.6 cm lead above, 18.6 cm on bottom and side walls	Mean variation
1928 :				
July	1.45			
Aug.	1.45			
Sept.				
Oct.	1.44			
Nov.				
Dec.	1.41	0.07 ₇		
1929 :				
Jan.	1.40	0.09 ₂	0.76	0.03 ₅
Febr.	1.41	0.11 ₈	0.80	0.05 ₁
March	1.42	0.05 ₄	0.80	0.03 ₄
April	1.42	0.06 ₇	0.83	0.03 ₅
May	1.53	0.06 ₁	0.94	0.05 ₀
June			0.94	0.05 ₃
18—30 July	1.43	0.05 ₉	0.80	0.05 ₃
Aug.	1.43	0.06 ₁	0.85	0.05 ₆

760 Meter up sealevel, barometric pressure 700 mm.

During the same period the number of mobile ions in the atmosphere was recorded and it was found that from August, 26 till April, 27 it did not vary much and amounted to 580 for positive and to 520 for negative ions, the numbers in May being 870 and 750 and in June 1000 and 840²⁾.

The number of ions also increased in May 1929, the exact amounts have not yet been published.

It may finally be mentioned, that a publication by STEINKE³⁾ just appeared about the accurate recording of the radiation during a year

¹⁾ Proc. Royal Akad. of Amsterdam, **30**, p. 1118, 1927.

²⁾ Proc. Fourth Pacific Science Congress, Bandoeng 1929, Atm. El. p. 3, 10.

³⁾ E. STEINKE, Ueber Schwankungen der kosmischen Ultrastrahlung, Z. f. Physik, **B-64**, p. 51, 1930.

with an instrument with a 12 cm iron armour in which a rise of the radiation in May and June occurs of 3 %, HOFFMANN and LINDHOLM¹⁾ records giving a slight increase between records in January and March. Hence the reality of this increase of radiation is undeniable.

The question now arises, however, what cause can be found for this variation. Here attention must again be called to the conclusion drawn already in 1927. When it appears that in a definite period of the year the radiation considerably increases and this during the whole day, it can hardly be assumed that the cause of this variation lies outside the planetary system; for it is pretty well excluded that suddenly simultaneously in entirely different directions in the cosmos the intensity of radiation should change so much. Hence there must be a terrestrial cause which either gives rise to the emitted intensity, or modifies the absorption in the atmosphere.

§ 2. While the series of observations at Bandoeng had to be broken off because of the voyage back to Europe, this voyage could be utilized for measurements on the variation with the latitude for the third time.

These experiments were made under the same circumstances as those on the voyage to the East-Indies, and now with two instruments, one of them used in the same armour as that used in the measurements at Bandoeng. After my arrival in Europe measurements were made in the physical laboratory at Amsterdam and afterwards in a private house about 14 meters above the ground. These observations confirm again that the intensity varies with the latitude. The difference between Amsterdam and Batavia is about 28 %.

It is to be mentioned that as far as the Canal of Suez the barometer was always 76 cm and 77 cm in the Mediterranean, so that here a small correction would have to be applied, which would still increase the value there. At Amsterdam the observations were made at a height of the barometer of 76 cm.

It is very remarkable that on all three voyages a minimum occurs in the Canal of Suez.

The first series of observations, (July 1927) which for the rest has very little value because the mistake was made to place the apparatus on deck so that it was exposed to great variations of temperature, which most probably was the cause that the apparatus got to leak, also showed the minimum in the Canal of Suez very clearly.²⁾

The values in the third column of table II had to be revised as far as the absolute values are concerned, in consequence of the fact that the capacity assumed in the preceding communication appeared to be too small. The determination of the capacity as it appeared later to give the just value, will be given in the next paragraph.

¹⁾ G. HOFFMANN und F. LINDHOLM, *Gerlands Beiträge zur Geophysik*, **20**, p. 12, 1928.

²⁾ Proc. Royal Acad. of Amsterdam, **30**, p. 1116, 1927.

TABLE II.
Variations of the intensity of ultraradiation with the geographical latitude.

	Latitude	Voyage from Ge- noa to Batavia June 1—23 1928, in 8 cm iron	Voyage from Ba- tavia to Genoa, Sept. 11—Oct. 3 1929, in 8 cm iron	Without armour more
Amsterdam	52°		1.24	
Genoa—Messina	40°		1.10	
Messina—Creta	35°	1.41	1.12	
Creta—Port-Said	33°	1.43	1.00	
Suez-Canal	30°	1.18	0.95	0.36
Red Sea (Northern Part)	25°	1.33	1.01	
Red Sea (Southern Part)	15°	1.33	0.98	0.31
Gulf of Aden	12°	1.27	1.00	0.26
Indian Ocean	10°	1.27	0.95	
Sabang	5°	1.26	1.04	
Sabang—Singapore	2°	1.23	0.93	
Singapore—Batavia	-3°	1.18	0.94	
Batavia	-6°	1.27	0.96	
Bandoeng (750 M. above sea-level)	-7°	1.43	1.31	

As the residual ionization was measured under 84 M. rock, it is possible that under a still thicker layer it would be found to be about 0.5 I less, according to the results of REGENER¹⁾ in the Lake of Constanz. If so, to all the values of I in Table I and II 0.5 must be added.

It may be pointed out here that owing to the circumstance, that the observations in 1928, made on the voyage to the East-Indies happened to be made from June 1st to June 23rd, the values were probably greater than normal in consequence to the fact that the above mentioned increase of intensity observed in 1927 and 1929, took place in the same period in 1928. This will probably also have caused the variation with the latitude to be greater than normal.

Finally attention may be drawn to the observation of CORLIN, who found a decrease of 2.78 to 1.75 between 55° and 68° N. Lat.²⁾. We have to wait for the measurements of BOTHE and KOLHÖRSTER last summer, made between Hamburg and Spitzbergen, which seem, however, not to confirm this variation, as they told me.

From this, together with the observations by KOLHÖRSTER³⁾ in Wanikoi

¹⁾ E. REGENER, Naturwissenschaften, 17, p. 183, 1929.

²⁾ AXEL CORLIN, Arkiv. f. Mat. Astr. ad Phys., B. 22, p. 1, 1930.

³⁾ W. KOLHÖRSTER, Zeitschr. f. Phys., B. 11, p. 379, 1922.

(Asia Minor) which were found very low, 1.05 I, it might be derived that the ultraradiation would have a zone of maximum intensity in Europe. That the intensity in Asia Minor is observed to be very low, coincides remarkably well with the minimum value in the Suez Canal found by me three times.

Hence, as STEINKE justly remarked at the congress at Königsberg in Sept. 1930, there is every reason to collect results with equal instruments which are compared with each other, under equal circumstances at different places of the earth (which work is going on now) in order to know more about the distribution of intensity. This could, e. g. very well be combined with magnetic measurements, which are made at present at different places, and which will more particularly be performed in the magnetic year 1932.

§ 3. It was already mentioned before, that with the electrometers of the type of KOLHÖRSTER there was a difficulty to measure accurately the very small capacity of the system, insulated in the ionization chamber. In the preceding communication it was explained how the capacity was found by means of an interference method with two circuits of vibration in which the electrometer was placed. A second determination was made in the Reichsanstalt in Berlin with high frequency vibrations in the MAXWELL bridge. Now a simple electrostatic method was applied, which still exceeds the two other methods in sensibility.

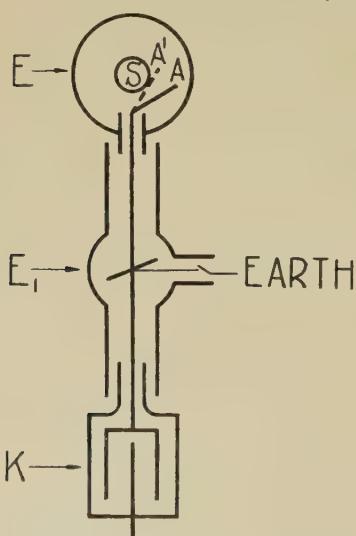


Fig. 2.

Let S be the system, insulated in the ionizationvessel E and A a small rod, passing insulated through the wall of the vessel, which can charge the system by contact with S in the position A' , then the following method will be used to determine the capacity of the system C .

The rod A is connected with a sensitive electrometer E_1 (e.g. LINDEMANN electrometer) which is further connected with a condenser (e.g. a measuring condenser of WULF).

When in this arrangement the outside of E and of K are charged to a potential V , the needle of E_1 being earthed, a variation of capacity which is caused by movement of A and eventually contact

of A with S , after the connection with the earth has been broken, can be compensated by a variation of the capacity of K . It now appears that this method becomes exceedingly sensitive, when the outside of E and of K is charged to a sufficiently high potential. For, if the capacity of the whole, namely the rod A , the electrometer E and the condenser

K , is C , an increase of the capacity dC will give a change of the potential of the needle dV_1 , so that $C dV_1 = -V dC$, hence

$$dC = -C \frac{dV_1}{V}.$$

If $dV_1 = 0,001$ Volt (value of one scalar division), $C = 15$ cm and $V = 100$ Volt, then $dC = 15 \cdot 10^{-5}$ cm. The sensibility can even be increased by taking the potential of the outside of E n times as high as that of K . The variation in capacity which then must be given to K to compensate a small variation of the capacity in E , is n times as great as this last one. Accordingly the method is amply sufficient to measure a variation of 0,001 cm of the system, if the value of K is sufficiently accurately known. It has, besides, the advantage to be completed in a few seconds.

In this measurement it now appeared that one thing had been overlooked in the earlier calculation. For, when S is first uncharged and A is brought into a position in which no inductive influence between A and S exists as yet, the electrometer is brought to zero. If now A is turned towards S , an induction arises which increases the capacity of A , till the moment that A gets in contact with S . At that moment the capacity is increased by an amount C_s , but at the same moment the capacity of S is diminished by an amount C_i , which is corresponding to the part of the field occupied by A_1 . The capacity of A_1 is further diminished by an amount C'_i , which is caused by the presence of S . As C_i and C'_i are small we may put according to MAXWELL¹⁾ $C_i = C'_i$.

Now C_i can be found by three methods. In the first place C_i may be found by turning A back to the position where the influence practically ceases. Likewise C_i may be found from the variation which was measured at the first movement, when A was turned towards S to the point that contact just took place. (This method, however, always gives somewhat too small values.) A very accurate value is, however, found when in charging the electrometer E as for the ordinary measurements, the potential V_1 is read when the charging rod still makes contact, and again the potential V_2 is read after the charging rod is turned off. Now $(C_s - C_i) V_1 = C_s V_2$.

What before was overlooked in the same measurement is, that to the capacity measured in the way indicated above, the amount C_i must be added twice. For at the moment of contact not only C_s is diminished by the amount C_i , but also the capacity of the rod A in the position A_1 is diminished by the amount C'_i .

Consequently, as HESS²⁾ already suspected, the absolute value in Communication II was calculated too small; but the difference is not so great as he expected.

¹⁾ J. C. MAXWELL, Electricity and Magnetism, § 88.

²⁾ V. F. HESS, Phys. Zeitschr., 31, p. 284, 1930.

For $C_s - 2 C_i$ had been found before with the method of interference of electric oscillations : 0.288 ± 0.001
 with MAXWELL's bridge : 0.297 ± 0.005
 according to the last measurement : 0.272 ± 0.001 .

The difference between the last value and the first can perhaps be explained by the fact that the standardcondenser of WULF was calibrated (P. T. R.) within two percent, and that the value measured by vibration gives systematic difference with the static method. Also it is possible that the capacity really has got a small difference since 1928.

We took the value of 0,272 cm. as the most probable on the moment. C_i was measured by the third method given above and a number of values were obtained for which $a = \frac{V_1}{V_2}$ varied between 1,22 and 1,23 and from which $a = 1,226$ was calculated.

From these data we got $C_i = 0,070$ and $C_s = 0,412$ for instrument A. In the same way 0,441 was found for instrument B, hence the ratio of their capacities is, 1,07. In a controlexperiment in which 2,49 mG radium was placed at 1,5 meter distance from the two apparatus, this ratio was found to be 1,15 when the same ionization may be assumed in the two apparatus.

Owing to the great value of the capacity of the rod, which was 8,0 cm, the method of the divisions of charge, applied by KOLHÖRSTER¹⁾, could not be used. Nor did the method of HESS and REITZ²⁾ yield reliable results in consequence of the insufficient insulation of the quartz on the outside of the instrument.

¹⁾ W. KOLHÖRSTER, Phys. Zeitschr., 31, p. 280, 1930.

²⁾ V. F. HESS and F. A. REITZ, Phys. Zeitschr., 31, p. 284, 1930.

Amsterdam, Sept. '30.

Astrophysics. — *On the electrostatic field of the sun as a factor in the evolution of the planets.* By H. P. BERLAGE Jr., Observatory, Batavia. (Communicated by Prof. H. A. KRAMERS).

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

In a former paper¹⁾ I have proved that, if the sun radiates uninterruptedly and evenly in all directions per second n material corpuscles of mass m_p and charge $+e$ and n corpuscles of mass m_n and charge $-e$ a stationary regime is generated, bearing the following characteristics. The limiting velocity v_0 at infinity is equal for both kinds of particles. The surplus of positive charge E , which is contained in a sphere of radius r around the sun, can — for values of r greater than a certain minimum value r_0 — be represented in first approximation by the formulae

$$E = -\frac{ne}{v_0^2 a} \left[r^{\frac{1}{2}} \left\{ c_1 \left(\frac{1}{2} - \sqrt{\frac{1}{4} - a} \right) r^{\sqrt{\frac{1}{4} - a}} + \right. \right. \\ \left. \left. + c_2 \left(\frac{1}{2} + \sqrt{\frac{1}{4} - a} \right) r^{-\sqrt{\frac{1}{4} - a}} \right\} \right]_{r_0}^r + E_0 \right\}. \quad (1)$$

or

$$E = -\frac{ne}{v_0^2 a} \left[r^{\frac{1}{2}} \left\{ \left(\frac{1}{2} c_1 - c_2 \sqrt{a - \frac{1}{4}} \right) \cos \left(\sqrt{a - \frac{1}{4}} \lg \frac{r}{r_0} \right) + \right. \right. \\ \left. \left. + \left(c_1 \sqrt{a - \frac{1}{4}} + \frac{1}{2} c_2 \right) \sin \left(\sqrt{a - \frac{1}{4}} \lg \frac{r}{r_0} \right) \right\} \right]_{r_0}^r + E_0 \right\}. \quad (2)$$

with

$$a = \frac{ne^2}{v_0^3} \left(\frac{1}{m_p} + \frac{1}{m_n} \right), \dots \dots \dots \quad (3)$$

the first formula holding for $a < \frac{1}{4}$ or weak corpuscular stream, the second formula for $a > \frac{1}{4}$ or strong corpuscular stream. The factors c_1 and c_2 are integration constants, to be determined by the boundary conditions; E_0 is the surplus of positive charge contained in the sphere of radius r_0 .

This was the solution of a problem which is in itself interesting enough, but the answer gave rise to a new question. If it be assumed that the second case applies to the sun, might there perhaps cosmogonical significance be attached to the series of concentric spherical surfaces, where, as we have seen, the space charge changes from negative to positive,

¹⁾ Proceedings, Royal Acad., 33, p. 614, 1930.

again back from positive to negative and so on? The ratio of the radii of two successive surfaces of this type, r_{n+1} and r_n , amounts to

$$\frac{r_{n+1}}{r_n} = e^{\frac{\pi}{\sqrt{a - \frac{1}{4}}}} = \text{constant}, \dots \dots \dots \quad (4)$$

which strongly suggests some connection with the essentially exponential law for the distances of the planets from the sun.

In the present paper I endeavour to give some evidence in favour of the theory that the well-known progression of the radii of the planetary orbits is due to the radially periodic character which the electrostatic field of the sun, if certain circumstances have been fulfilled, must have developed. I now hardly hesitate to support the following conception of the creation of the solar system.

Out of a piece of the galactic spiral nebula the sun was born, surrounded by a rarified amorphous atmosphere. In consequence of its shrinking, the atmosphere rotated faster and faster and thus became flatter and flatter. The result was a sun, surrounded by a rather thin gas disc, extending in the invariable plane of the atmosphere, which evidently made a small angle with the solar equatorial plane. It happened that the mass of the disc was negligible compared with the mass of the sun, the moment of momentum of the sun, however, negligible compared with the moment of momentum of the disc. As far as I can see, no serious arguments have ever been raised against the possibility of this development and up to this point KANT's nebular hypothesis may be considered as being well established.

However, we cannot follow KANT further. It has been pointed out by F. NÖLKE that KANT's disc would never have spontaneously condensed into some few big planets and if it had done so, why should the planetary distances from the sun follow any law at all? I always insist on the point that BODE's law touches the very root of the problem and it is here that we introduce the solar electrostatic field in its second form and let it play its essential part in the evolution of the planetary system. It should be remarked that only with the transformation of the three-dimensional initial solar atmosphere into a quasi two-dimensional body, which our disc is, the field could develop the spherical symmetry on which our calculations were based.

At a distance r from the sun the force of the electrostatic field amounts to $E : r^2$. It is zero, where $E = 0$, or

$$\left. \begin{aligned} r^{\frac{1}{2}} \left\{ \left(\frac{1}{2} c_1 - c_2 \sqrt{a - \frac{1}{4}} \right) \cos \left(\sqrt{a - \frac{1}{4}} \lg \frac{r}{r_0} \right) + \right. \right. \\ \left. \left. + \left(c_1 \sqrt{a - \frac{1}{4}} + \frac{1}{2} c_2 \right) \sin \left(\sqrt{a - \frac{1}{4}} \lg \frac{r}{r_0} \right) \right\} = \right. \\ \left. = \frac{v_0^2 a}{ne} E_0 + r_0^{\frac{1}{2}} \left(\frac{1}{2} c_1 - c_2 \sqrt{a - \frac{1}{4}} \right). \right. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

This equation proves the existence of a series of concentric spherical surfaces, where the force is zero. If the potential reaches a maximum value at one surface, it reaches a minimum at the next.

Now we must not forget that the gas of our disc is always ionized to a certain degree. Every moment atoms lose an electron and after some time catch another. This charging and discharging does not remain without effects.

As soon as an atom has become ionized, it experiences an additional force, drawing it towards one of the circles, along which the plane of the disc is cut by the zero surfaces of the field, in this case — because the ion is positively charged — one of the circles, where the potential attains a minimum. If it were completely free to move, the ion would, in consequence of its inertia, oscillate about this circle along a sort of serpentine, much the same as our moon does about the orbit of the earth. In reality this oscillation is hampered by the collisions with the other atoms and the impulses gained by absorption and emission of radiation. The result must be a more or less aperiodic shifting of the ion towards the nearest circle of minimum potential. The free electrons will of course tend to accumulate along the circles of maximum potential but, compared with the much heavier ions, their rôle in this process is probably less significant.

As soon as the ion has again caught an electron the motion described above ceases. Thus every atom, which becomes regularly charged during part of its life, is drawing nearer and nearer to one of the circles of minimum potential. When once an atom describes such a circle with a velocity according to KEPLER's third law, it is, by charging and discharging alone, not compelled to remove from this orbit.

In short, the gas must have a tendency to condense along those circles, where the surfaces of minimum potential of the solar electrostatic field cut the plane of the disc.

One is reminded of the formation of CHLADNI's sand figures on a vibrating plate by the gathering of the sand particles along the lines of rest. It is very interesting to meet here the solar electrostatic field in the function of the vibrating plate with its nodal lines and ventral segments, gradually transforming the gas disc into a system of concentric gas rings.

We started with KANT's amorphous nebula and now finish with the concentric gas rings of LAPLACE, without having met the insurmountable difficulties inherent to the end of the history as KANT conceived it and the beginning of the history as LAPLACE conceived it. If then it may further be assumed that the gas rings changed into planets, how do we find the law of their distances from the sun? It can be deduced from equation (5) determining the distances, where the force of the electrostatic field reduces to zero, the planetary orbits, however, coinciding only with the surfaces, where the potential reaches a minimum value.

If the right side of (5) happens to be zero, the series of planetary distances may evidently be represented by the formula

$$r_n = \text{constant} \times e^{\frac{2\pi n}{\sqrt{a - \frac{1}{4}}}} \quad (n = 0, 1, 2, \dots) \dots \dots \quad (6)$$

If however the right side of (5) is finite, we may write simply

$$r_n = \text{constant} \times e^{\frac{2\pi n}{\sqrt{a - \frac{1}{4}}}} + \text{correction term} \quad (n = 0, 1, 2, \dots), \dots \quad (7)$$

because the importance of the correction term, when compared with the exponential term, decreases with increasing n . But precisely this is BODE's law.

$$r_n = 0.3 \times 2^n + 0.4 \text{ A.U.} \quad (n = 0, 1, 2, \dots), \dots \dots \quad (8)$$

with the only subordinate difference that our correction term is not a constant.

Now it is a well-known fact that Neptune's orbit does not conform with BODE's law and the new planet Pluto seems to make the discordance still bigger. Evidently BODE's formulation has been too simple, but notwithstanding these shortcomings most writers agree that its exponential character may doubtless be maintained. If we assume for simplicity the ratio to be 2, we find

$$e^{\frac{2\pi}{\sqrt{a - \frac{1}{4}}}} = 2 \quad \text{or} \quad a = 80 \dots \dots \dots \dots \quad (9)$$

Hence

$$\frac{ne^2}{v_0^3} \left(\frac{1}{m_p} + \frac{1}{m_n} \right) = 80 \dots \dots \dots \dots \quad (10)$$

This interesting relation serves to prove that the evolution of the planets might be intimately connected with factors, whose empirical determination is only a question of time.

It will be remarked by those readers, who have followed my past attempts to explain the evolution of the planetary system with the aid of the solar electrostatic field that, this time, one former result is seriously threatened. I mean the deduction of the ratio of the masses of the planets from the chemical composition of the earth's crust. I must confess to abandon this support to my theory unwillingly. However it cannot be denied that the new conception is much more rational than the old, so that I feel inclined to drop the consideration concerning the planetary masses, if no further inquiry revives its possibility.

Need it be said, on the other hand, that the writer is himself aware of the many weak links remaining in the chain of events proposed in this paper? Yet he sees in it a theme ripe for discussion.

Weltevreden, Juli 1930.

Physics. — *The application of the hot-wire anemometer for the investigation of turbulence of an airstream.* By M. ZIEGLER. (Mededeeling N°. 20 uit het Laboratorium voor Aero- en Hydrodynamica der Technische Hoogeschool te Delft).¹⁾ (Communicated by Prof. H. A. KRAMERS).

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

In 1926 some experiments were published concerning the measurement of the velocity fluctuations in an airstream. Making use of hot-wire anemometers with very thin wires, the variations of the air velocity were registered in various cases, and at the same time some observations were made about the correlation between simultaneous variations in different places and also about the correlation between velocity and direction variations, for which purpose a special velocity and directionmeter was constructed.²⁾

The obtained results, however, concerned fluctuations of but fairly low frequencies, as frequencies less than 50 per second only are reproduced properly by the torsion-string galvanometers used for the experiments. It is evident that for an exact study of the structure of a turbulent airstream one ought to be able to record fluctuations of much shorter periods.

It was not difficult to replace the torsion-string galvanometers by more rapid oscillographs. With SIEMENS and HALSKE oscillograph systems of the sensitive type, which are suitable for frequencies up till 1500 per., a very short and thin wire (Plat.-Ir., diam. 0,015 mm, length 2 mm), placed in the turbulent boundary layer along a smooth plate and connected with a convenient Wheatstone bridge arrangement, produces variations of current of sufficient amplitude for obtaining good records. An amplifier makes it possible to reach 10.000 periods per sec. with more rapid, but less sensitive systems. A cathode ray oscillograph would enable recording of still higher frequencies without difficulty.

The question remains, however, whether the used hot-wires themselves can give an exact reproduction of the velocity fluctuations in a certain place.

¹⁾ Mededeelingen N°. 17, 18, 19 are published respectively in the Proc. of the 3rd Intern. Congress for Technical Mechanics (Stockholm), in the Zeitschr. f. angew. Math. u. Mech. **10**, p. 326, 1930, and in the Proc. of the 5th Intern. Air Congress (The Hague).

²⁾ Comp. J. M. BURGERS, these Proceedings **29**, p. 547, 1926 and Journal of Applied Physics (Moscow), 4, p. 3, 1927. In the latter paper have been reproduced some records of the velocity fluctuations in the boundary layer along a glass plate.

Mentioning must be made also of a series of papers by E. HUGUENARD, A. MAGNAN et A. PLANIOL, *Sur une méthode de mesure de la vitesse et de la direction instantanées du vent*, La Technique Aéronautique 1923, 1924.

It is difficult to determine how much the wire and its holder can change the local structure of the stream. Only an experimental study of the influence of a small disturbing body on the structure of the turbulent boundary layer can give certainty in this matter. The wires used, however, are so thin and the needles to which they are attached have such a small diameter, that one may suppose that the disturbing effect of the whole instrument can be feeled behind the hot-wire only.

For an exact reproduction of the fluctuations in a certain place the length of the wire ought to be small compared to the "wave-length" of the "eddies" in a direction parallel to the wire. A preliminary research accomplished in this laboratory in the beginning of this year, showed that for a study of the eddying boundary layer the hot-wires must certainly be much shorter than the wires used till now. From the fact that in the case of a wire of 0.015 mm diam., placed perpendicularly to the stream in the turbulent boundary layer along a smooth plate, two adjacent parts, each about 2 mm long, could be influenced quite differently, and that the differences were approximately of the same magnitude as the recorded air velocity fluctuations themselves, one may conclude that a hot-wire for such experiments must probably be much shorter than 1 mm.

The records then obtained showed at the same time that velocity fluctuations of fairly high frequency were still reproduced. Hence it was necessary to investigate how much the sensitivity of the hot-wires used diminished for these high frequencies, in comparison to the sensitivity for a constant variation of the airspeed.

In the publication mentioned it was calculated that the lag of a hot-wire for speed variations is given by the equation:

$$\frac{d\theta}{dt} = \lambda(\theta - \theta') \dots \dots \dots \dots \quad (1)$$

where λ is a factor the approximate expression of which is:

$$\lambda = \frac{0.24 i^2 R_0}{C\theta} \dots \dots \dots \dots \quad (2)$$

(θ = actual temperature of the wire; θ' = equilibrium temperature; i = electric current through the wire; R_0 = electrical resistance at the temperature of the air; C = heat capacity). From equation (1) the loss of sensitivity for sinusoidal speed variations as a function of the frequency can be deduced easily. When a constant airspeed variation produces a variation of the wire resistance equal to A , the amplitude of the periodical resistance variations caused by small sinusoidal velocity fluctuations of amplitude A and frequency f is equal to:

$$a = \frac{A}{\sqrt{1 + (2\pi f/\lambda)^2}} \dots \dots \dots \dots \quad (3)$$

In the formula for the time constant λ of a hot-wire some quantities occur, which generally are known with but very little accuracy. The resistance coefficient, necessary for the determination of the temperature of the wire, depends very much on the composition of the metal, on its structure, on internal tensions etc. The diameter of such thin wires is exactly known only after a special measurement. It is therefore desirable to determine the sensitivity of a hot-wire anemometer for rapid air speed fluctuations by an empirical method.

Until now such an experimental determination has been done only for fluctuations of frequency lower than 60 per sec. and for wires of no smaller diameter than 0,017 mm.¹⁾ In a steady airstream of constant velocity a wire was oscillated mechanically parallel to the direction of the stream. The sinusoidal airspeed variations thus obtained produced periodical resistance variations which were recorded.

For higher frequencies and wires of 0,003 mm diameter for example this method cannot be applied. On the other hand it seems to be very difficult, in an airstream of some velocity, to produce rapid sinusoidal speed fluctuations of known and not too small amplitude.

There exists, however, a quite different method to determine empirically the sensitivity of a hot-wire for rapid fluctuations. Indeed, when instead of periodically changing the velocity of the airstream in which the hot-wire is placed, the electric current which heats the wire is subjected to sinusoidal periodic variations of a given amplitude, the variations of the temperature and thus also of the resistance of the wire will decrease with the frequency in quite the same way as in the case of the resistance fluctuations caused by airspeed fluctuations. Upon this principle the following method of measurement has been based.

A hot-wire W forms one of the branches of a Wheatstone bridge arrangement (see wiring diagram of the arrangement, fig. 1). The wire itself is mounted in the smaller windchannel of the laboratory and is connected by an electric line with the room where all the measurements were performed. The bridge is balanced for a given air speed and a given heating current. On the direct tension between A and B an alternating tension is superposed, and so a current of sinusoidally varying intensity flows through the branches of the bridge and thus through the wire. If the wire had a constant resistance the balance of the bridge would not be disturbed,²⁾ but as its resistance changes periodically with the current, an alternating tension will be produced between C and D . The value of this alternating tension is proportional to the variation of resistance and thus depends on the frequency in the way indicated above.

¹⁾ See H. L. DRYDEN and A. M. KUETHE, The measurement of fluctuations of air speed by the hot-wire anemometer, Report N°. 320 N. A. C. A. (Washington 1929). The symbol M used by these authors corresponds to $1/\lambda$.

²⁾ The capacity of the long wire line caused a small difference for high frequencies but this influence was negligible under the conditions of operation.

For the measurements of the amplitude of the alternating current, triode voltmeters were used. These instruments have the advantage above

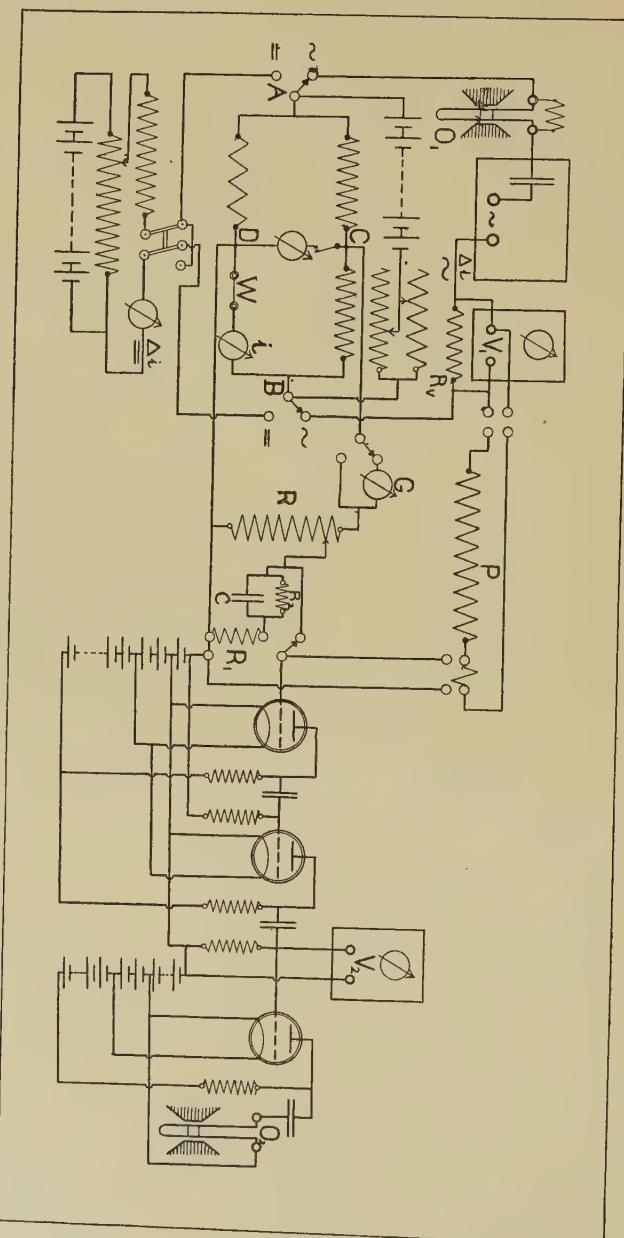


Fig. 1. Wiring diagram of the arrangement.

thermocouple instruments that they can withstand great potential differences without any danger; besides they permit a better measurement of small currents, as the deflection does not depend on the square of the amplitude but, at least for the used instruments, is approximately a linear

function of it.¹⁾ The alternating tensions between the points *C* and *D*, however, were much too small for direct measurement; hence a two-stage amplifier (amplification 300 times) was necessary. The amplifier is of the ordinary resistance coupled type, but the values of the resistances and capacities are so high, that alternating tensions of very low frequencies (a few periods per second) are still properly reproduced. The application of a real direct current amplifier has many disadvantages when a greater number of stages must be used; therefore a quasi-direct current amplifier is to be preferred.

The source of alternating current is a low-frequency generator, constructed by the N. V. Nederlandsche Instrumentenfabriek „Waldorp" of the type which is universally used now for radio and other purposes.²⁾ The instrument is composed of two high-frequent generators (reaction triode oscillators); one of them produces oscillations of a constant frequency, while the frequency of the other can be varied by means of a variable condenser in such a way that the frequency difference between the two generators can change from 0 to 15000. When both oscillations are superposed, the beats after detection give an alternating current of audible frequency which is practically sinusoidal for a period number higher than 20 if the set is judiciously constructed and used. The apparatus contains an amplifier and the energy of the produced alternating current is about $1\frac{1}{2}$ watts. The amplitude is approximately constant over the whole range and can be adjusted to a given value by means of a volume control.

An oscillograph always was working during the experiments. On the rotating mirror the form of the produced alternating current could be observed; a comparison with the 50 period alternating current of the main circuit of the laboratory made it easy to adjust the exact frequency.

The amplification of the amplifier was determined very often during the experiments by measuring the alternating tension at the end of the second stage, caused by an input tension of known amplitude which was obtained with the potentiometer arrangement *P* indicated in the wiring diagram. In order to eliminate at once all possible errors caused by any frequency dependance of the whole arrangement (bridge, amplifier, etc.), the wire was replaced by a constant resistance, while the bridge was desequilibrated so much that when the normal alternating tension was put between *A* and *B*, the output tension of the amplifier had about the same value as when working with a hot-wire. For a variable frequency and constant tension on the bridge, the variation of output tension then was noted. The amplifier characteristic caused a small decrease of the amplitude for the highest frequencies. Only in a few cases this had to be taken into consideration.

¹⁾ The meters used were 2-Volt Moullinmeters, constructed by the N.V. Nederlandsche Instrumentenfabriek „Waldorp".

²⁾ See e.g. Y. B. F. J. GROENEVELD, *Physica* 8, p. 157, 1928.

Frequency calibration of a wire.

First the resistance R_0 of the wire at room temperature was determined, by equilibrating the bridge for a very small direct current. Then at the desired airspeed V the heating current i was brought to such a value that the wire had a given resistance R_w . The bridge then was balanced. The intensity of the alternating current is determined with the aid of one of the triode voltmeters, by measuring the tension on a resistance R_v ; at all frequencies this tension is kept at the same value by means of the volume-control. In order to increase the range of exact reading of the output voltmeter, the potential differences which arise are diminished so much with the potentiometer R , that the outputmeter never marks more than 1 volt, which also gives certainty of linear working of the amplifier. As long as the tensions are great enough, the position of the calibrated potentiometer is read for an output tension of 1 volt; when the tensions are lower the voltmeter itself must be read.

In this way the amplitude of the resistance variations caused by alternating currents of frequencies from 25 upwards was measured in various circumstances. In order to get the whole frequency curve it was necessary also to measure the sensitivity for a direct current variation. For this the arrangement shown in the lower left hand corner in the wiring diagram is used. This arrangement makes it possible to read very exactly small variations of the current i comparable with the amplitude of the alternating current which was first superposed. As the used amplifier is not a real direct current one, it was not possible to measure the output tension caused by direct current variations; therefore by means of the microammeter G the current through the resistance R was determined and thus the potential difference between C and D became known. This tension, multiplied by the factor of amplification, gives a value which is comparable with the output tensions got with alternating currents.¹⁾

The fluctuations of the resistance of the wires caused by the airspeed variations in the undisturbed stream of the wind channel in these experiments generally could be neglected against the resistance fluctuations imposed by the alternating current.

This arrangement proved to work very satisfactory. The measurements were repeated more than once and the obtained values generally differed but very little. The origin of the small differences has to be searched rather in the fact, that the simultaneous readings by one operator of various instruments which could not be placed near each other, not always happened with the greatest exactitude, than in an inconstancy of the arrangement.

¹⁾ Of course, those alternating tensions are intended, which should be obtained without the reduction of the input tension by means of the potentiometer R .

When greater differences were found, a change in the hot-wire itself proved to be the cause. One must not wonder indeed that after being heated to a high temperature during a long time the internal properties of the metal and hence the resistance-coefficient, could change sensibly. Moreover the wires of 0,015 mm were attached to their holders with ordinary soft solder, and in some cases this method proved to be not an ideal one: the resistance of the junctures was not always negligible, nor was it constant (this has been remarked also by other investigators). However, when the soldering was done very carefully under the microscope, this inconvenience proved to be redressed.¹⁾

The measurements have been done principally with platinum-iridium wires of 0,015 mm diameter. At first it was investigated whether the amplitude of the superposed alternating current had any influence on the form of

TABLE I.

Frequency	$i = 0.162 \text{ A.}$		$i = 0.234 \text{ A.}$		$i = 0.138 \text{ A.}$	
	$i = 8.75 \text{ mA.}$	$i = 17.50 \text{ mA.}$	$i = 8.75 \text{ mA.}$	$i = 17.50 \text{ mA.}$	$i = 8.75 \text{ mA.}$	$i = 17.50 \text{ mA.}$
0	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
25	0.735	0.738	0.747	0.764	0.722	0.724
50	0.518	0.497	0.490	0.493	0.515	0.517
100	0.294	0.296	0.321	0.293	0.313	0.300
150	0.203	0.212	0.210	0.201	0.202	0.208
200	0.149	0.153	0.161	0.148	0.148	0.151
300	0.101	0.105	0.101	0.101	0.103	0.099
400	0.073	0.073	0.071	0.072	0.079	0.075
500	0.059	0.060	0.060	0.060	0.062	0.058
700	0.044	0.043	0.047	0.045	0.047	0.044
1000	0.029	0.027	0.031	0.027	0.030	0.029
1500	0.015	0.016	0.021	0.018	0.015	0.017
2000	0.010	0.009	0.017	0.013		
3000			0.013	0.009		

Decrease of amplitude of resistance variations as function of the frequency, determined for a 0.015 mm wire, with superposed alternating currents of 8.75 and 17.50 mA and various heating currents.

¹⁾ See H. L. DRYDEN and A. M. KUETHE, Effect of turbulence in wind tunnel measurements, Appendix, Report N°. 342 N. A. C. A. (Washington 1929), where these authors describe another solution of the inconvenience mentioned.

the frequency characteristic of the measured resistance variations, and whether the amplitude ought not to be much smaller than was desirable for a convenient reading of the instruments. Therefore measurements were done with alternating currents of effective strength of 8,75 and 17,50 mA. The current which flowed through the wire itself was somewhat smaller, as can be calculated from the way of connection. The results (see Table I) show very clearly that the differences can be ascribed to errors of reading, and do not influence the form of the characteristic curve.

The wire which was used for these measurements, was broken before its length was measured exactly; so the theoretical values cannot be given for comparison.

For the later measurements on wires of 0,015 mm diameter with the same arrangement the effective value of the used alternating current was mostly 8,75 mA.

With the aid of formula (3) the theoretical values were calculated for some frequencies. As $\theta = (R - R_0)/\alpha R_0$, where α is the temperature

TABLE II.

Frequency	A		B		C		D		E		F	
	M	C	M	C	M	C	M	C	M	C	M	C
0	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
25	0.817	0.816	0.773	0.773	0.855	0.855	0.750	0.750	0.690	0.675	0.420	0.340
50	0.556	0.579	0.524	0.520	0.684	0.633	0.518	0.495	0.463	0.417	0.236	0.178
100	0.317	0.336	0.303	0.293	0.443	0.379	0.314	0.274	0.257	0.223	0.130	0.090
150	0.201		0.204		0.311		0.211		0.175		0.084	
200	0.159	0.175	0.163	0.151	0.236	0.201	0.157	0.141	0.128	0.114	0.063	0.045
300	0.101		0.111		0.160		0.107		0.083		0.043	
400	0.083		0.080		0.120		0.081		0.065		0.032	
500	0.067	0.071	0.063	0.061	0.097	0.080	0.063	0.057	0.050	0.046	0.026	0.018
700	0.050		0.047		0.073		0.050		0.039		0.021	
1000	0.029		0.032		0.052		0.035		0.027		0.015	
1500	0.014		0.024		0.036		0.022		0.016		0.009	
2000			0.019		0.027		0.019		0.014		0.007	
3000			0.013		0.019		0.013		0.009			

Decrease of amplitude of resistance variations for a 0.015 mm wire. $R_0 = 31.6$ ohms; length = 2.88 cm. M: measured values; C: calculated values.

TABEL II (continued).

	Heating current	Resistance	Air velocity	Calculated λ
A	0.146 A.	37.6 Ω	10 m/sec	223
B	0.220 A.	47.6 Ω	10 "	192
C	0.325 A.	57.6 Ω	31.2 "	257
D	0.271 A.	57.6 Ω	10 "	177
E	0.244 A.	57.6 Ω	5 "	144
F	0.153 A.	57.6 Ω	0 "	57

coefficient of the resistance, the formula for λ can be transformed into $\lambda = \frac{i^2 a R_0^2}{4.2 C(R - R_0)}$. For a given wire aR_0^2/C is constant.

In table II the results are given obtained with a platinum-iridium wire of 0.015 mm diameter and 2.88 cm length. (For the resistance coefficient was accepted $a = 0.00093$, a value which had been determined empirically some time ago.)

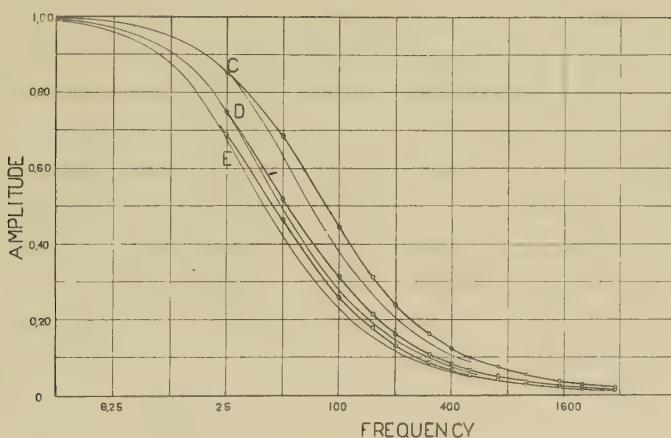


Fig. 2. Graphical representation of the cases C, D and E of table II.

Thick lines: measured values

Thin lines: theoretical curves.

The graphs of figure 2 show the decrease of the amplitude in function of the frequency in three cases, relating to a constant temperature of the wire, and to different airspeeds, thus to different heating currents. The calculated values are indicated by the thin lines. The possible inexactitudes are so many that this result may be considered as fairly satisfactory, both with regard to the developed theory and to the experimental method. Indeed the coefficient of resistance is known with but very small exactitude, the diameter of the wire has been taken simply from

the data supplied by the manufacturing firm; the sensitivity for direct and for alternating current is measured in a different way and with different instruments; the produced alternating current is not entirely free from harmonics. A small error made in the comparison of the two sensitivities causes a rise or a fall of the whole curve, while an error in the value of the calculated λ influences the inclination of the curve. By changing these quantities by amounts which lie wholly within the allowable limits, the curves can be brought to coincidence.

Measurements done with two other wires correspond well with the theory (Table III). The fact that for the lower frequencies in both cases

TABLE III.

Frequency	G		H	
	M	C	M	C
0	1.000	1.000	1.000	1.000
25	0.795	0.812	0.867	0.905
50	0.562	0.573	0.705	0.727
100	0.342	0.330	0.468	0.467
150	0.207		0.334	
200	0.165	0.172	0.248	0.256
300	0.111		0.169	
400	0.095		0.125	
500	0.070	0.070	0.101	0.105
700	0.047		0.072	
1000	0.030		0.049	
1500	0.016		0.032	
2000			0.023	
3000			0.017	

Decrease of amplitude of resistance variations as function of the frequency for two 0.015 mm wires.

M = Measured, C = Calculated.

G: length = 2.08 cm; heating current = 0.138 A.; R = 27.6 ohms; velocity of the air = ca 10 m/sec. Calculated λ = 219.

H: length = 2.48 cm; heating current = 0.164 A.; R = 31.6 ohms; velocity of the air = ca 34 m/sec. Calculated λ = 331.

a smaller value is found than the calculated one, can be ascribed to the circumstance that the alternating currents of low frequency obtained from the generator have a comparatively greater percentage of harmonics than the currents of higher frequency.

Measurements on wires of smaller diameter.

In the same way measurements have been done with platinum wires of 0,003 mm diameter. Of course very much patience is needed for experimenting with such thin wires, as ruptures are very frequent. For the study of the turbulent boundary layer it will be necessary, however, to use them. As has been remarked already, the wires must be very short, and the variations of tension caused by fluctuations of air speed of a given amplitude are greater on a thin wire with a high resistance, than on a thicker wire of the same length. It is desirable also to have a wire diameter which is very small compared to the length for eliminating as much as possible the disturbing cooling effects of the ends. When such thin wires are used the ends of the holders can be made very thin, and the perturbation of the air stream can be reduced to a minimum. The characteristic curve for thin wires of course is much more advantageous than for wires of 0,015 mm diameter, as is demonstrated by the results mentioned below. When a compensative circuit is used as described further in this communication, the sensitivity of the whole anemometer remains much greater when the same frequency characteristic is required.

Table IV give some results obtained with wires of 0,003 mm diam. and of lengths from 5,5 to 0,75 mm.

TABLE IV.

Frequency	I		J		K	
	M	C	M	C	M	C
0		1.005		1.004		1.004
50	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
100	0.956	0.987	0.950	0.989	0.945	0.988
200	0.902		0.792		0.830	
500	0.712		0.700		0.725	
700			0.582		0.574	
1000	0.510	0.471	0.457	0.503	0.448	0.490
1500	0.372		0.315		0.344	
2000	0.316	0.261	0.250	0.278	0.270	0.271
3000	0.218		0.166		0.180	
5000	0.129	0.107	0.097	0.115	0.104	0.111
7000	0.098		0.067		0.071	
10.000	0.066	0.054	0.044	0.058	0.040	0.056

Decrease of amplitude of resistance variations as function of the frequency for 3 wires of 0,003 mm diameter.

TABLE IV (Continued¹).

	Length	Heating current	R	Calculated λ
I	5.50 mm	0.022 A.	269.5 ohms	3390
J	0.90 mm	0.027 A.	21.1 ohms	3640
K	0.75 mm	0.026 A.	18.6 ohms	3510

Velocity of the air = ca 10 m/sec.

As accurate values for the direct current sensitivity were not available, the sensitivity for 50 periods per sec. has been taken equal to 1. The differences between observed and calculated values are greater than for wires of 0.015 mm; but of course the possible errors are much greater in the case of thinner wires. For the resistance coefficient here 0.0038 was accepted.

Compensating circuit.

When an exact reproduction of airspeed fluctuations is wanted, fluctuations of high frequency must be reproduced in the same proportion as slow fluctuations. With a simple compensating circuit it is possible to make the characteristic curve of a wire horizontal up till an arbitrary high frequency. Of course the use of such a circuit causes a diminution of sensitivity for low frequencies.

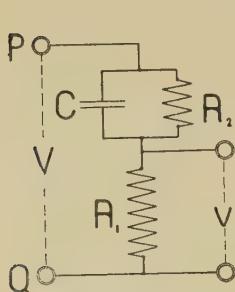


Fig. 3.
Compensating circuit.

When in the circuit of fig. 3 between P and Q an alternating tension is applied of frequency $f = \omega/2\pi$ and amplitude V , the tension v will be equal to:

$$v = V \sqrt{\frac{R_2^2 + R_1^2 R_2^2 \omega^2 C^2}{(R_1 + R_2)^2 + R_1^2 R_2^2 \omega^2 C^2}} \quad . \quad (4)$$

At the frequency 0 (direct tension): $v = VR_2/(R_1 + R_2)$, and thus a constant variation of V with ΔV causes a variation $\Delta v = \Delta VR_2/(R_1 + R_2)$. At the frequency $f = \infty$: $v = V$.

If such a circuit is placed in the arrangement of the hot-wire anemometer, it is not difficult for a given value of C to determine experimentally the values which R_1 and R_2 must have in order to get an approximately horizontal characteristic curve up till a given frequency. The value of R_1 must be chosen in such a way, that for $R_2 = \infty$ at a desired high frequency now a maximum of amplitude occurs. Then R_2 must get such a value that the lowest frequencies are reproduced with the same sensitivity.

With the arrangement used it thus is possible not only to determine the normal characteristic curve of a wire within very short time, but it is also possible to make the sensitivity constant over a given range of frequencies.

Fig. 4 gives in Volts the effective output tension of the amplifier for a wire of 0,015 mm and for a wire of 0,003 mm, both without and with compensation (the input tension is kept constant in every case). For a better comparison the compensated characteristic is given also on

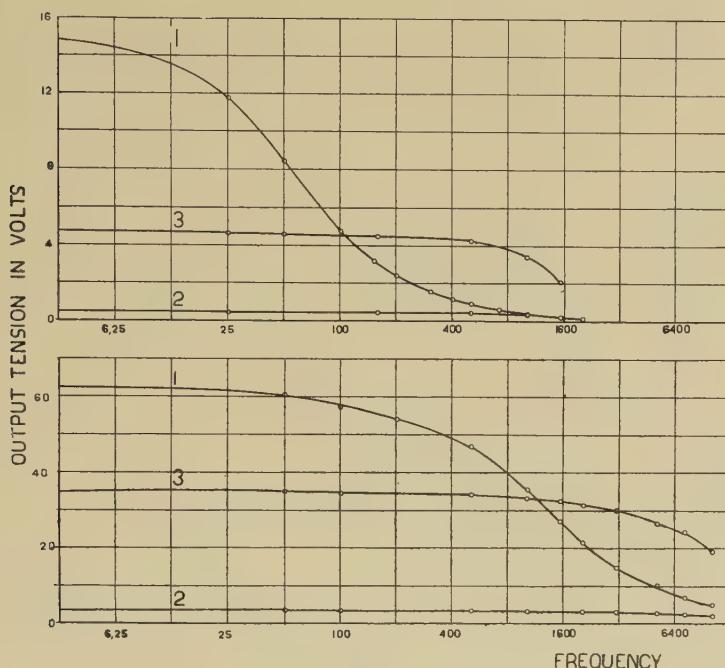


Fig. 4. Characteristic curves of a 0.015 mm wire (upper diagram) and a 0.003 mm wire (lower diagram), without and with compensation.

1. Normal curve;
2. Compensated curve on the same scale;
3. Compensated curve on an enlarged scale (10X).

a greater scale. It may be remarked that the degree of compensation is wholly arbitrary, and that the requirements will depend in general on the circumstances and the results of the experiments themselves.

Experiments executed just now with a compensated hot-wire of 0,003 mm diam. and 0,75 mm length, which satisfied the requirements of sufficient sensitivity for high frequencies, have demonstrated the existence in the turbulent boundary layer of velocity fluctuations with periods of the order of 1/1000th of a second. Records obtained with a high velocity of the paper in the photographic camera showed fluctuations with frequencies above 1000 (the oscillograph systems used in these experiments do not allow to record fluctuations with periods much above 1500). In the diagram fig. 1 the third amplifying stage, necessary for obtaining records with the oscillograph system O_2 , has been indicated at the right hand side.

In this paper we have considered only the amplitude of the fluctuations reproduced by the hot-wire arrangement. Investigations are in progress concerning the change of phase which the fluctuations undergo. The phases are of importance f.i. in the correct reproduction of the complicated fluctuations of the velocity which usually occur, and which are not at all simply harmonic.¹⁾

We feel obliged finally to point to the rather preliminary character of the whole arrangement, which has been constructed principally in view of determining the characteristic curve. A description of an arrangement made especially for the investigation of fast fluctuations of the air velocity we hope to publish before long, together with some results obtained with it.

¹⁾ Note added in the proof. The use of the compensating circuit greatly reduces the change of phase, due to the lag of the wire.

Chemistry. — Untersuchungen zur Realisierung eines Zerfalls des Blei-Atoms. III. Von A. SMITS und Fr. H. S. VENING MEINESZ. (Communicated by Prof. P. ZEEMAN.)

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

Wir wollen anfangen daran zu erinnern, dass die Untersuchungen von SMITS und KARSSEN¹⁾ mit einer sehr gut wirkenden Quarz-Blei-Lampe, welche nach vielen Änderungen konstruiert worden war, sehr deutlich positive Resultate lieferte. Als diese Lampe zerbrochen war und eine neue angefertigt werden musste, stellte sich heraus, dass es sehr schwierig war, nicht nur das erhaltene Resultat zu reproduzieren, sondern auch eine Lampe mit denselben Eigenschaften zu erhalten. Die neuen Lampen pumpten u.A. bei dem Schaukeln alles Gas aus dem Bogenraum fort; das flüssige Blei lief vor der Unterbrechung des elektrischen Stromes nicht mehr in solchen feinen Strahlen dem Glaswand entlang, was bei der früheren Lampe wohl der Fall war und eben vor der Stromunterbrechung eine beinah explosive Verdampfung des Bleies verursachte. Nach vielen erfolglosen Versuchen gelang es schliesslich wieder eine Lampe herzustellen, die zwar nicht wie früher, doch ziemlich gut wirkte. Diese Lampe gab wieder ein positives Resultat, doch nach viel längerer Zeit.

Es ist hierbei noch zu bemerken, dass alle benutzten Materialien mit grösster Sorgfalt gereinigt waren und so waren das Blei, das Eisen, die Kohle und der Quarz chemisch-analytisch und spektroskopisch vollkommen quecksilberfrei befunden. Es muss hier ausdrücklich bemerkt werden, dass die von uns angegebene Methode, um Blei quecksilberfrei zu machen, absolut zuverlässig ist, wie auch unsere Anfangsspektren bewiesen. Dass es THOMASSEN²⁾ bei Anwendung unserer Reinigungsmethode nicht gelang, das Blei quecksilberfrei zu machen, beweist, dass er einen Fehler beging und vielleicht nicht über quecksilberfreien Wasserstoff verfügte. Die Differenz in Flüchtigkeit zwischen Hg und Pb bei 800° ist so gross, dass reiner Wasserstoff, beim Hindurchleiten, das Quecksilber in relativ kurzer Zeit vollkommen austreibt. Wir wenden denn auch diese Methode noch stets mit grossem Erfolg an.

Wie wir schon früher bemerkten, sind wir, ungeachtet ein Fehler in den Versuchen mit der Quarz-Bleilampe nicht entdeckt werden konnte, so lange das erhaltene Resultat einzig da steht, nicht ganz überzeugt, dass das Quecksilber durch Transmutation entstanden ist.

¹⁾ Z. f. Elektr. Chem. **32**, 577 (1926).

²⁾ Metallwirtschaft, Heft **25** (1928).

Es ist aber sehr schwer sich eine Vorstellung zu machen von der Weise, woraus dann während des Brennens eine Verunreinigung des Bleis mit Quecksilber entstanden sein kann. Man würde, obwohl es sehr unwahrscheinlich ist, annehmen müssen, dass die stählernen Elektroden oder die Kohlen-elektroden, oder beide, obgleich diese sich nach Ausglühen, sowohl chemisch-analytisch als spektroskopisch (Flammenbogen) vollkommen quecksilberfrei erwiesen, doch Quecksilber enthielten d.h. in unnachweisbaren Spuren, und dass, während des Brennens, diese unnachweisbaren Spuren sich vereinigt haben und so nachweisbar geworden sind. Obwohl sehr unwahrscheinlich, kann man natürlich doch nicht sagen, dass dieses absolut unmöglich ist, und darum können wir, wie wir schon früher, und hier oben nochmals betonten, die Transmutation von Blei in Quecksilber noch nicht als sicher bewiesen erachten.

Es war deshalb von grossem Interesse einen Weg zu finden, um dem Problem von einer anderen Seite zu nähern. SMITS und FREDERIKSE¹⁾ stellten Funkenversuche in Gasen und in flüssigen Dielektriken bei hohen elektrischen Spannungen, und Flammenbogen-versuche in Dielektriken bei niedrigen Spannungen an, aber die Resultate waren negativ. Dann führten sie Versuche mit einem rotierenden Blei-Unterbrecher von Pyrexglas aus, welche bis jetzt auch negative Resultate lieferten²⁾.

Während dieser Untersuchungen lernten wir die Publikationen von Mlle MARACINEANU³⁾ kennen in der mitgeteilt wird, dass bei Benutzung des empfindlichen Elektrometers von SZILARD und des ZnS-Schirmes konstatiert wurde, dass die Obenseite des Bleis von dem Dach des Observatoriums in Paris radioaktiv ist und α -Teilchen aussendet. Sie schreibt diese Erscheinung dem Einfluss des Sonnenlichtes zu⁴⁾.

Es leuchtet ein, dass dieses uns sehr interessierte, weil wenn Blei *wirklich* unter dem Einfluss des Sonnenlichtes radioaktiv wird und α -Teilchen aussendet, dieses auf eine Transmutation hinweisen würde, wobei, wie SMITS⁵⁾ schon früher angab, in erster Linie eine Bildung von Quecksilber erwartet werden kann. So betrachtet, würde uns also in der Bestrahlung mit Sonnenlicht und mit Strahlen anderer Frequenzen vielleicht ein anderer Weg zum Studium unseres Problems gegeben sein.

Das war das Bild, dass sich auftat, und SMITS und Frl. MAC GILLAVRY fingen an das Blei von dem Dach des Observatoriums von Paris mittelst des empfindlichen Elektrometers von SZILARD und eines ZnS-Schirmes zu untersuchen. Das Resultat war, wie schon früher mitgeteilt

¹⁾ Z. f. Elektr. Chem. **34**, 350 (1928).

²⁾ Diese Versuche werden bald mit einem Apparat von etwas abgeänderter Konstruktion wiederholt.

³⁾ Compt. Rend. **181**, 774 (1925); **183**, 345 (1926); **184**, 1322, 1547 (1927); **185**, 122 (1927); **186**, 746 (1928).

⁴⁾ Auch Prof. DESLANDRES ist dieser Meinung. Comptes Rendus **190**, 635 (1930).

⁵⁾ Nature **117**, 620, (1926).

wurde ¹⁾), dass die Ergebnisse von Mlle MARACINEANU vollkommen bestätigt gefunden wurden ²⁾.

Bestrahlungsversuche mit Sonnenlicht.

Obwohl Mlle MARACINEANU auch den Staub auf dem Dach des Observatoriums untersuchte und nicht radioaktiv fand, schien es erwünscht, ein Experiment auszuführen, wobei ein Niederschlag von radioaktivem Staub aus der Atmosphäre ganz ausgeschlossen war. Es wurde versucht dieses zu erreichen durch bleierne Platten, in Kästen von reinem durchsichtigen Bergkristall einzuschmelzen, und dann der Sonnenstrahlung auszusetzen. Bis heute hat sich leider herausgestellt, dass diese Quarzkästen nach kurzer Zeit Risse bekommen oder zerbrechen, sodass es wahrscheinlich nur ausnahmsweise gelingen wird, eine Sonnenbestrahlung von einigen Monaten, ohne dass der Quarzkasten Risse bekommt, auszuführen. Wir haben uns jetzt entschlossen, die Bleiplatten in Kästen von Glas einzuschmelzen.

Inzwischen wurden Bleiplatten untersucht, die uns durch die Vermittlung des Herrn Stadtarchitekts von Amsterdam Ing. A. R. HULSHOFF zur Verfügung gestellt wurden, wofür wir ihm hier freundlichst danken. Das Blei hatte 25 bis 40 Jahre zur Dachbedeckung gedient und kam von der Sonnenseite verschiedener Gebäude.

Bevor wir nun die Resultate, mit dem Elektrometer erhalten, mitteilen, sei auf Folgendes hingewiesen. Weil die *Al*-Werte oft mehr oder weniger wechseln, welches einen Vergleich erschwert, haben SMITS und FREDERIKSE ³⁾ früher schon eine Methode angegeben, um einen spezifischen Bleiwert zu berechnen, der von den *Al*-Werten unabhängig ist.

Sie führten dazu eine Grösse B_{Pb} ein, die mit den Entladungszeiten von *Al* und *Pb*, die sie A_{Al} und A_{Pb} nannten, nach der folgenden Gleichung zusammenhängt.

$$\frac{1}{B_{Pb}} = \frac{1}{A_{Pb}} - \frac{1}{A_{Al}}.$$

Sie zeigten nämlich, dass der Entladungsstrom von Blei in zwei Teile zerlegt werden kann, in einen, der sich auf die spontane Ionisation und unvollkommene Isolation bezieht, und der auch für Aluminium gilt, und in einen, der seinen Grund findet, in der durch von der Bleiplatte ausgesandten α -Teilchen verursachten Ionisation, welche bei Aluminium nicht vorkommt, wenn wir annehmen, dass *Al* vollkommen inaktiv ist. Es ist also der Ionisationsstrom durch die von dem Blei ausgesandten α -Teilchen verursacht und als Differenz zwischen den bei Aluminium und Blei beobachteten

¹⁾ Z. f. Elektrochemie **34**, Note Seite 358 (1928).

Proc. Kon. Akad. v. Wet. **32**, 610, (1929).

²⁾ BOUTARIC und Mlle ROY (Comptes Rendus **190**, 483 (1930)) fanden dieselbe Erscheinung auch noch bei Zink und Kupfer und meinen dass die Radioaktivität durch einen radioaktiven Niederschlag aus der Atmosphäre verursacht ist.

³⁾ l. c.

Ströme aufzufassen. Und weil die Entladungszeiten den Entladungsströmen umgekehrt proportional sind, kamen sie zu der obengenannten Beziehung. Der Wert B_{Pb} ist also bei diesen Untersuchungen von grosser Wichtigkeit.

Die erste Pb -Platte gab an beiden Seiten vollkommen dieselbe Resultate wie die Al -Platte und war also *nicht* radioaktiv. Die zweite Platte war an der Schattenseite nicht, und an der Sonnenseite schwach radioaktiv, aber hier wurde vermutet, dass ehe uns die Platte zur Hand gestellt war, sie irrtümlicherweise gereinigt war, wobei die Platte an der Sonnenseite vermutlich etwas abgeschabt wurde. Nach erneuter Sonnenbestrahlung von beiden Platten zeigte die zweite Bleiplatte eine ziemlich grosse Empfindlichkeit. Nach 4 Monaten Bestrahlung auf dem Dach des Laboratoriums war das Resultat nämlich Folgendes:

Metall	Wahrscheinlichster Wert der Entladungszeit pro 5 Teilstriche des Mikrometers ¹⁾	B-Wert
Al	$A_{Al} = 180$	
Pb Schattenseite	$A_{PbH} = 180$	$B_{PbH} = \infty$
Pb Sonnenseite	$A_{PbV} = 121$	$B_{PbV} = 366$

Die zweite Bleiplatte war also deutlich radioaktiv geworden, die erste Bleiplatte aber zeigte keine Radioaktivität.

Eine dritte Bleiplatte von einem anderen Gebäude zeigte einen ziemlich starken Effekt, welches sich aus folgenden Zahlen ergibt.

Metall	Wahrscheinlichster Wert der Entladungszeit pro 5 Teilstriche des Mikrometers	B-Wert
Al	$A_{Al} = 255$	
Pb Schattenseite	$A_{PbH} = 238$	$B_{PbH} = 3803$
Al	$A_{Al} = 221$	
Pb Sonnenseite	$A_{PbV} = 149$	$B_{PbV} = 457$

Nachdem also bei zwei von den drei Platten ein positiver Effekt erhalten

¹⁾ Der Elektrometer von SZILARD gab bei 440 V. einen Ausschlag von 133 Skalenteilchen, also 1 Skalenteilchen = 3.3 V. Ein Teilchen der Mikrometerverteilung = 0.11 V. Der Elektrometer war unter eine leicht auf und ab-bewegbare Glocke aufgestellt.

worden war, wurde ein Experiment auf der Schafbergspitze, (Salzkammergut, Ober Österreich in 1800 M. Höhe) ausgeführt, wo eine inaktive Bleiplatte auf dem Dach des Hotels befestigt wurde¹⁾. Die Exposition dauerte von 12 Aug.—12 Oct. 1929; das Wetter war aber ungünstig, sodass während dieser zwei Monate nur 17 richtige Sonnentage vorkamen. Das Resultat dieser Bestrahlung folgt aus unterstehenden Tabelle.

Metall	Wahrscheinlichster Wert der Entladungszeit pro 5 Teilstriche des Mikrometers	B-Wert
Al	$A_{Al} = 230$	
Pb Schattenseite	$A_{Pb_H} = 230$	$B_{Pb_H} = \infty$
Pb Sonnenseite	$A_{Pb_V} = 195$	$B_{Pb_V} = 996$

Das Resultat war also schwach, aber bestimmt positiv²⁾.

Darauf gelangten wir durch die freundliche Zustimmung von Madame M. W. SHILLITO DINA, Besitzerin des Observatoriums des *Mont Blanc*, eine Bleiplatte an der Südseite des Gebäudes befestigen zu lassen, welches durch Monsieur LAVAIRE, Maire de Chamonix den Führer, der das Aufsicht über das Observatorium führt, vorigen Monat aufgetragen wurde.

In demselben Monat wurde auch eine Bleiplatte an einem Pfosten auf der Terrasse des Touristenhauses auf dem Jungfraujoch befestigt³⁾, und so werden wir im Herbst 1931 in der Lage sein, den Einfluss einer Sonnenbestrahlung auf verschiedener Höhe untersuchen zu können.

Bestrahlungsversuche mit Röntgenlicht.

Bevor die Bestrahlungsversuche mit Röntgenlicht zu besprechen, möchten wir Folgendes bemerken. Wie in der Z.f. Elektrochemie 32, 577 (1926) mitgeteilt wurde, waren die Versuche mit der Quarzbleilampe angefangen, weil SMITS es vielleicht möglich erachtete, den Atomkern in einen gestörten, also in einen instabilen Zustand überzuführen, wobei dann aus diesem Kern α -Teilchen hervorstreten könnten. Obwohl der Energie-Aufwand bei

¹⁾ Dieses verdanken wir dem freundlichen Entgegenkommen des Hoteldirektors HANS EGGL und der tüchtigen Hilfe des Monteurs H. GRABNER.

²⁾ Die hier gegebenen Resultate weichen also stark von denjenigen von BEHOUNEK (Phys. Zeitschr. 31, 215 (1930)) ab, der einen Einfluss einer Insolation nicht hat finden können. Die erste Bleiplatte, welche wir untersuchten, zeigte sich aber auch unempfindlich und die Ursache des Ausbleibens eines Effektes muss noch untersucht werden.

³⁾ Dieses verdanken wir der freundlichen Vermittlung des Herrn ENGELHARD Chem. Docts. Amsterdam.

diesen Experimenten relativ sehr klein ist, wurde dieses doch möglich erachtet, weil es Atomkerne geben wird, welche dem spontanen Radioaktivitätszustand so stark genähert sind, dass sie vielleicht nur einer kleinen Störung bedürfen, um in den radioaktiven Zustand überzugehen.

Als wir nun später in 1927 mit den Bestrahlungsexperimenten mittels Röntgenlicht anfingen, war der leitende Gedanke natürlich im Grund derselbe. Es wurde möglich erachtet, dass Atomkerne existieren, in welchen einige α -Teilchen vorkommen, welche dem Austrittszustand so stark genähert sind, dass nur eine relativ kleine Energieaufnahme genügt, um in den austrittsfähigen Zustand zu geraten. Die Resultate der Bestrahlungsversuche mit Röntgenlicht weisen nun, wie wir sehen werden, in der Tat darauf hin, dass ein derartiger Prozess, als gedacht wurde, sich im Atomkern abzuspielen scheint.

Schon vor drei Jahren tingen SMITS und FREDERIKSE mit der Bestrahlung mit Röntgenlicht an, und hier konnte in der Tat in einigen Fällen ein Effekt konstatiert werden¹⁾. Bei dieser Bestrahlung wurde eine Coolidge-Röhre (Wolfram Antikathode) mit ± 40 K.V. und 1 m.A. belastet und die Bleiplatte in einer Entfernung von 27 cm von der Antikathode aufgestellt. Das Resultat der Messungen mit dem Elektrometer war Folgendes:

Metall	Wahrscheinlichster Wert der Entladungszeit pro 5 Teilstriche des Mikrometers in Sekunden	B-Wert
Al	$A_{Al} = 456$	
Pb vor der Bestrahlung	$A_{Pb_I} = 400$	$B_{Pb_I} = 3257$
Pb 1 $\frac{1}{4}$ Stunde bestr. mit 40 KV. 1 mA.	$A_{Pb_{II}} = 327$	$B_{Pb_{II}} = 1156$
Pb_I bedeutet Blei vor der Bestrahlung und Pb_{II} Blei nach der Bestrahlung		

Denselben Tag wurde diese Bleiplatte nochmals bestrahlt mit folgendem Resultat:

Metall	Wahrscheinlichster Wert der Entladungszeit pro 5 Teilstriche des Mikrometers in Sekunden	B-Wert
Al	$A_{Al} = 454$	
Pb	$A_{Pb_I} = 400$	$B_{Pb_I} = 3363$
Pb 1 Stunde bestrahlt mit 40 KV. 1 mA.	$A_{Pb_{II}} = 309$	$B_{Pb_{II}} = 967$

¹⁾ Die Publikation Verschien in 1928. Z. f. Elektr. Chem. 34, 350 (1928).

Aus diesen Versuchen folgt, dass die Entladungszeit durch Bestrahlung des Bleis mit Röntgenstrahlen deutlich abgenommen hat.

SMITS und FREDERIKSE haben dann die bestrahlte Seite ein wenig abgeschabt und darauf folgendes merkwürdiges Resultat erhalten:

Al	$A_{Al} = 452$	
Pb bestrahlte Seite abgeschabt	$A_{Pb_O} = 392$	$B_{Pb_O} = 2930$

Durch Abschaben ist die Entladungszeit also wieder stark zugenommen.

Es war interessant zu sehen, was nun der Einfluss einer erneuten Bestrahlung mit Röntgenstrahlen sein würde. Das Experiment lehrte Folgendes:

Al	$A_{Al} = 451^1)$	
Pb Aufs neue 2 Stunden bestrahlt mit ± 40 KV. 1 mA.	$A_{Pb_{II}} = 365$	$B_{Pb_{II}} = 1913$

Was bei unseren Untersuchungen, welche doch einen deutlichen Einfluss der Bestrahlung mit Röntgenlicht auf die Radioaktivität des Bleis verraten, auffiel, war, dass eine viele Stunden fortgesetzte Bestrahlung nicht eine deutliche, weitere Zunahme der Radioaktivität, bewirkte viel mehr einen Zurückgang, und darum haben SMITS und FREDERIKSE sich äusserst vorsichtig ausgedrückt und gesagt, dass die erhaltenen Resultate nur als eine Hinweisung aufgefasst werden müssen, dass durch Bestrahlung von Blei mit Röntgenlicht eine Radioaktivität hervorgerufen wird.

Obengenanntes Resultat wurde von ihnen also schon in 1928 publiziert²⁾ und seitdem sind die Versuche von uns fortgesetzt in der Hoffnung bei langeren Bestrahlungen stärkere Effekte zu bekommen.

Das Resultat war aber, dass wenn das Blei einmal durch eine kurze Bestrahlung aktiv geworden war, es bei fortgesetzter Bestrahlung in Aktivität wieder zurückging. Es schien also, dass die Aktivierung als Funktion

¹⁾ Der A_{Al} -Wert am Schluss des Experimentes war 406; weil wir aber in der letzten Zeit gefunden haben, dass ein derartiges Fallen des A_{Al} -Wertes am Schluss des Experimentes verursacht wird dadurch, dass eben zuvor eine aktiver Bleiplatte gemessen ist, kann man in solch einem Falle diesen A_{Al} -Schlusswert nicht in Rechnung ziehen.

²⁾ In der Abhandlung Z. f. Elektr. Chem. 34, 350 (1928) kommen störende Druckfehler vor, so wurde nicht mit einer Spannung von 140 K.V., sondern mit ± 40 K.V. gearbeitet. Weiter ist der Anfangswert für Blei in Tabelle 2, Seite 357, nicht richtig angegeben. Diese Fehler sind hier korrigiert.

von der Bestrahlungszeit einen Maximumwert durchläuft, sodass es ratsam war mit kürzerer Bestrahlungs-dauer zu arbeiten.

Durch einen Unfall wurde dann leider der Elektrometer, der meistens gut arbeitete, gestört und musste sehr viel Zeit geopfert werden um den Apparat wieder herzustellen. Gleichzeitig wurde untersucht, unter welchen Umständen der Elektrometer noch genauere Resultate würde geben können. Es stellte sich heraus, dass es ein Vorteil sein würde, das System, welches von Stahl war, durch ein System von Aluminium zu ersetzen.

In der Zwischenzeit war Prof. ESCLANGON, der Nachfolger von Prof. DESLANDRES so freundlich, uns ein gutes Exemplar von dem Observatorium von Paris zu leihen, wofür wir ihm hier nochmals unseren aufrichtigen Dank aussprechen. Dieser Elektrometer besass schon ein System von Aluminium, welches, weil magnetische Störungen jetzt keinen Einfluss ausüben, wirklich ein Vorteil ist.

Schon 5 Jan. 1928 stellten wir Versuche an, die Scintillationen des von Röntgenstrahlen aktivierten Bleis zu zählen, doch ohne Resultat, welches aber an der zu kleinen Vergrösserung und an dem zu kleinen Gesichtsfeld unserer damals benutzten Loupe zugeschrieben werden musste. Bei der Fortsetzung unserer Versuche wollten wir nochmals neben den elektrometrischen Messungen auch die Scintillationen zählen und dazu benutzten wir dann die Apparatur, welche bei den Untersuchungen des Bleis von dem Dache des Observatoriums in Paris gebraucht war¹⁾.

Es ist erwünscht hier vorher in Erinnerung zu bringen, wie die Zahlen der Scintillationen einerseits aus dem Elektrometer-Resultat schätzender Weise berechnet und anderseits direkt beobachtet, sich bei obengenannten Messungen verhielten. Wir fanden, dass bei unserem Szilard 1 Mikrometer Teilchen

$$\frac{1}{\text{sec.}} = 14 \cdot 10^{-4} \text{ E.S.}$$

Wählen wir jetzt das Resultat erhalten bei der Untersuchung der aktiven Seite des Bleies des Observatoriums von Paris. Es wurde gefunden:

$$A_{Al} = 220 \text{ sec.} ; \quad A_{Pb_{\text{Sonnenseite}}} = 60 \text{ sec. woraus sich ergibt}$$

$$B_{Pb_{\text{Sonnenseite}}} = 82,5 \text{ sec.}$$

d.h. das ist die Entladungszeit für 5 Mikrometer-Teilchen, nur durch die Radioaktivität des Bleies verursacht. Dieses korrespondiert mit einer Quantität Elektrizität von $\frac{5}{82,5} \cdot 14 \cdot 10^{-4} \text{ E.S./sec.}$ Setzen wir $e = 4,7 \cdot 10^{-10}$, so ist diese Quantität Elektrizität geliefert von $1,81 \cdot 10^5$ Ionen.

Nun liefert ein α -Teilchen von RaC' $2,36 \cdot 10^5$ Ionen. I , das totale Ionisationsvermögen, ist $R^{2/3}$ umgekehrt proportional, worin R das Durchdringungsvermögen darstellt. R ist für RaC' zu $\pm 7 \text{ cm}$ gefunden. Setzt man

¹⁾ Proc. Kon. Akad. v. Wet. Amsterdam, 32, 610 (1929).

jetzt voraus, dass für die α -Strahlungen des untersuchten Bleis $R = \pm 2 \text{ cm}$ ist, dann ist hier

$$I = \frac{2,36 \cdot 10^5}{(7/2)^{2/3}} = \frac{2,36 \cdot 10^5}{2,31}.$$

Also

$$I = 10^5$$

Ein α -Teilchen gibt hier also 10^5 Ionen, sodass pro Sekunde 1.81 α -Teilchen von der ganzen Bleioberfläche ausgesandt werden. Die Bleiplatte hatte einen Strahl von 7 cm und das Gesichtsfeld der Loupe einen Strahl von 1.2 cm. Die Oberfläche des Gesichtsfeldes war also $1/35$ von der Bleioberfläche, sodass in der Loupe pro Minute $\frac{1.81 \cdot 60}{35} = 3.1$ Scintillationen erwartet werden konnten.

Die direkte Zählungen lieferten 7 à 8 Scintillationen, welche Differenz wahrscheinlich nicht nur der Unsicherheit in der Schätzung des Wertes von R zugeschrieben werden kann. Es scheint nämlich auch möglich, dass ein Teil der Ionisation für den Elektrometer verloren geht. Das praktische Resultat ist dieses, dass man in Wirklichkeit eine Zahl Scintillationen findet, welche circa 2.5 Mal so gross ist, wie die Zahl auf obengenannter Weise aus dem Elektrometer-Resultat berechnet.

Bei Fortsetzung unserer Untersuchungen stellte sich in Übereinstimmung mit unseren früheren Erfahrungen Folgendes heraus.

Wenn es ein Mal gelungen ist durch chemisches Angreifen oder durch Abschaben dem Blei seine Aktivität zu entnehmen, sodass es in dem Elektrometer untersucht denselben Wert als eine inaktive *Al*-Platte gibt, so konnte durch eine kurze Bestrahlung von z.B. 20 Minuten mit Röntgenlicht mittelst einer Coolidge Röhre mit Wolfram Antikathode (belastet mit z.B. 45 KV und 1 mA) in einer Entfernung von 20 cm von der Antikathode eine Aktivierung des Bleis hervor gerufen werden. Es wurde z.B. gefunden, dass der B_{Pb} -Wert von ∞ bis zu den Wert von 638 sank. Nach einer zweiten Bestrahlung von 20 Minuten war der B_{Pb} -Wert aber schon auf 976 gestiegen und nach der dritten Bestrahlung von 30 Minuten war $B_{Pb} = 1571$. Bei einem anderen Versuch sank der B_{Pb} -Wert von ∞ bis zu 462. Wichtig ist hierbei zu bemerken, dass eine geätzte, resp. polierte *Al*-platte gleichzeitig mit der Bleiplatte bestrahlt gar keinen Einfluss von einer Röntgenbestrahlung unterfindet.

Was die Anzahl Szintillationen betrifft, so konnte mit Sicherheit festgestellt werden, dass nach Bestrahlung mit Röntgenlicht die Anzahl der Szintillationen circa 2 Mal so gross ist, als vor der Bestrahlung. Vor der Bestrahlung gab das Blei z.B. $\frac{7}{16}$ und nach der Bestrahlung $\frac{14}{16}$ Szintillationen pro Minute.

Aus diesen Ergebnissen folgt, dass der grösste Effekt d.h. der kleinste

B_{Pb} -Wert, welchen wir erhielten, 462 ist. Die Zahl der Szintillationen, welche sich auf Grund dieses Wertes pro Minute erwarten lässt, ist also 0.55 pro 4.5 cm^2 (Oberfläche des Gesichtsfeldes). Weil sich aber früher herausstellte, wie wir oben sahen, dass die direkt beobachtete Zahl 2.5 Mal grösser war, als die Berechnete, lassen sich also 1.4 Szintillationen pro 4.5 cm^2 pro Minute erwarten. So findet man für einen B_{Pb} -Wert von 638 die Zahl von 1 Szintillation pro Minute und diese Zahlen wurden auch ungefähr gefunden.

Die Resultate unserer Versuche, welche in der nächsten Abhandlung ausführlich mitgeteilt werden sollen, zeigen also, dass, wenn man von einer inaktiven Bleiplatte ausgeht, eine relativ kurze Bestrahlung mit Röntgenlicht eine Aktivierung bewirkt, welches sich sowohl durch Messungen mit dem Elektrometer, als durch Zählung der Szintillationen zeigen lässt.

Die Aktivierung scheint, als Funktion der Bestrahlungszeit, einen Maximum-Wert zu durchlaufen, welches darauf hinweisen konnte, dass die Röntgenbestrahlung in relativ kurzer Zeit die Atomkerne von den α -Teilchen, welche durch diese Bestrahlung in den austrittfähigen Zustand gebracht werden konnten, befreit.

Zu diesem Schluss würde man kommen, wenn es absolut ausgeschlossen wäre, dass radioaktiver Staub aus der Atmosphäre sich bei den Bestrahlungen auf die Bleiplatte absetzte¹⁾.

Gegen diese Absetzung spricht 1^o. dass eine *Al*-Platte bei einer solchen Bestrahlung keine Aktivierung erleidet und 2^o. dass die Aktivierung des Bleies bei fortgesetzter Bestrahlung zurückgeht. Ungeachtet dessen, wollen wir hier noch nicht unseren definitiven Urteil aussprechen. Wir wollten denn auch unsere Resultate erst später nach Ausbreitung unserer Untersuchungen veröffentlichen. Die kürzlich erschienene Arbeit von G. J. POKROWSKY²⁾ zwingt uns aber zu dieser Mitteilung. In seiner Abhandlung „Über eine mögliche Wirkung kurzwelliger Strahlung auf Atomkerne“ teilt POKROWSKY nämlich mit, dass nach Bestrahlung von Blei und einiger anderen Elementen mit Röntgen- oder γ -Strahlen bei Untersuchung mit einem *ZnS*-Schirm, die Elemente, die schwerer sind als *As*, aktiviert waren.

Bevor wir weiter auf diese interessante Abhandlung eingehen, fühlen wir uns verpflichtet hier festzustellen, dass diese Erscheinung, die Möglichkeit nämlich durch Bestrahlung mit Röntgenlicht eine Aktivierung hervorzurufen, bei Blei schon vor zwei Jahren von SMITS und FREDERIKSE gefunden worden ist; obwohl die Aktivierung recht deutlich war, haben sie vorsichtigkeitshalber dieses Resultat nur als eine Hinweisung betrachten wollen. Es freut uns natürlich sehr, dass auch von anderer Seite in derselben Richtung gearbeitet wird, weil auf diese Weise dieses äusserst interessantes Problem am schnellsten gelöst werden kann.

Wie auch aus seiner früheren Abhandlung „Über das Herausschleudern von α -Teilchen aus Atomkernen radioaktiver Stoffe durch kurzwellige

¹⁾ Siehe REBOUL, Comptes Rendus **189**, 1256 (1929); **190**, 374 (1930).

²⁾ Z. f. Phys. **63**, 561 (1930).

Strahlung" ¹⁾ folgt, ist es die Theorie von GAMOW ²⁾ welche POKROWSKY erwarten liess, dass die genannte Bestrahlungsversuche wahrscheinlich ein positives Resultat liefern würden. Wie POKROWSKY bemerkt, scheint es möglich zu sein, die Kernelektronen in einen solchen Zustand überzuführen, in welchen der ganze Kern unstabil wird und es scheint nicht unmöglich, dass dieses durch einen relativ kleinen Energieaufwand erreicht werden kann.

Wir sehen hieraus, dass der Grundgedanke derselbe ist, welcher SMITS in 1926 einen Effekt bei seinen Untersuchungen für möglich erscheinen liess.

Betrachten wir jetzt die von POKROWSKY erhaltenen Resultate, so ist zu bemerken, dass er bei Bestrahlung mit γ -Strahlen fand, dass die Aktivierung als Funktion der Bestrahlungszeit durch ein Maximum geht und schliesslich wieder ganz verschwindet, welches mit unseren Bestrahlungsversuchen mit Röntgenlicht übereinstimmt. Dass POKROWSKY dieselbe Erscheinung bei seinen Bestrahlungen mit Röntgenstrahlen observierte, ist aber sehr unwahrscheinlich, denn er sagt „dass schon am Anfang der Arbeit festgestellt werden konnte, dass der bei der Beleuchtung entstehende Effekt von der Expositionzeit, von der Stromstärke und der Spannung unabhängig ist, falls diese Grössen einen bestimmten Wert überschritten haben“.

Was die absolute Grösse der von POKROWSKY gefundenen Aktivierungen betrifft, lässt sich bemerken, dass diese viel grösser sind als je von uns beobachtet wurde. So findet man in seiner Tabelle 3, Seite 567, dass bei einer Bestrahlung mittelst Röntgenlicht der Wert $\frac{dn}{dt}$ d.h. die Anzahl Scintillationen pro cm^2/sec . 0.089 betrug. Das Gesichtsfeld unserer Loupe beträgt 4.5 cm^2 , sodass wir in diesem Fall 0.4 Scintillationen pro Sekunde oder 24 Scintillationen in der Minute hätten beobachten müssen. Nun wurde man behaupten können, dass unsere Loupe nicht ausreicht, die schwächeren Scintillationen zu beobachten. Das wäre natürlich möglich, aber dann würde doch der Elektrometer uns den Fehler gezeigt haben. Es ist darum interessant zu untersuchen, was die Entladungszeit für 5 Mikrometerteilchen in diesem Fall hätte sein müssen. Unsere Bleiplatte hat eine Oberfläche von 153.86 cm^2 . Wenn also 0.089α -Teilchen pro cm^2 und pro Sekunde ausgesandt werden, bekommt man für die ganze Oberfläche der Bleiplatte 13.69α -Teilchen, pro Sekunde, welche die Bildung von $13.69 \cdot 10^5$ Ionen veranlassen. Diese Ionen besitzen zusammen eine Elektrizitätsmenge von $13.69 \cdot 10^5 \cdot 4.7 \cdot 10^{-10}$ E.S. Fünf Mikrometerteilchen des Elektrometers korrespondieren mit $5.14 \cdot 10^{-4}$ E.S., sodass die Entladungszeit für fünf Mikrometerteilchen oder der Wert von B_{Pb} in diesem Fall $\frac{70 \cdot 10^{-4}}{6.43 \cdot 10^{-4}} =$ $= 10.9 \text{ sec}$. hätte sein müssen, während unserer kleinste B_{Pb} -Wert 462 oder 42.4 Mal so gross gefunden wurde.

¹⁾ Z. f. Phys. 59, 427 (1929).

²⁾ Z. f. Phys. 51, 204 (1928).

Wir kommen also zu dem Schluss, dass wenn mit einem Mikroskop besonderer Konstruktion mehr Scintillationen beobachtet werden können, das Verhältnis zwischen der direkt wahrnehmbaren Zahl und den aus dem Elektrometer-Resultat abgeleiteten Szintillationen nicht 2.5 sondern mindestens 40 ist.

Eine andere Möglichkeit würde sein können, dass POKROWSKY über Blei von einer viel grösseren Empfindlichkeit verfügt und deshalb haben wir Herrn POKROWSKY vorgeschlagen, uns eine Platte von seinem Blei zu schicken, während wir Ihm eine von uns zusenden werden. Auf diese Weise wird hoffentlich das Dilemma, welches nicht die qualitativen sondern die quantitativen Ergebnisse betrifft, aufgehoben werden können.

Zum Schluss wollen wir Frl. R. KROON für ihre jederzeit bereitwilligst erteilte Hilfe beim Zählen der Szintillationen unsernen aufrichtigen Dank aussprechen. Auch W. SINT, der uns bis spät Abends eifrigst half, sind wir Dank schuldig.

*Laboratorium für Allgemeine und Anorganische
Chemie der Universität.*

Amsterdam, September 1930.

Chemistry. — Der osmotische Druck und das Molekulargewicht von Acetylcellulose. Von E. H. BÜCHNER und P. J. P. SAMWEL. (Vorläufige Mitteilung.) (Communicated by Prof. F. A. H. SCHREINEMAKERS.)

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

Von VAN CAMPEN¹⁾ wurde in diesem Laboratorium ein Apparat hergestellt, mittels dessen es möglich ist, osmotische Drucke in kurzer Zeit zu messen. Derselbe beruht auf dem schon früher bisweilen angewandten Kompensationsprinzip. Statt die Lösung in einer Röhre aufsteigen zu lassen und die Höhe zu messen, die sie schliesslich erreicht, wird bei dem hier beschriebenen Verfahren auf die Lösung ein Druck ausgeübt, der das Eindringen des Lösungsmittels gerade verhindert. Man kann hierbei versuchen, diesen Druck selbst zu suchen und direkt zu bestimmen; man kann jedoch auch stärkere oder schwächere Drucke ausüben und die Geschwindigkeit messen, mit welcher sich das Lösungsmittel infolge des Druckes nach der einen oder der anderen Seite bewegt. Durch Inter-oder Extrapolation auf die Geschwindigkeit Null ist dann der osmotische Druck leicht zu finden, da experimentell festgestellt ist, dass der Zusammenhang zwischen Geschwindigkeit und ausgeübtem Druck durch eine Gerade wiedergegeben wird. Drei oder vier Messungen bei verschiedenen Drucken genügen und können innerhalb einer Stunde ausgeführt werden. Auch bei höheren Temperaturen lassen sich die Messungen leicht vornehmen, da der ganze Apparat in einem Thermostat untergebracht wird.

Diese Methode wurde nun von uns angewandt, um den osmotischen Druck von Acetylcellulose zu bestimmen, wodurch wir imstande waren, die Teilchengrösse dieses Stoffes unter verschiedenen Umständen zu berechnen. Das erste Erfordernis bei diesen Versuchen ist natürlich eine halbdurchlässige Wand. Zum Glück zeigte sich uns schon bald, dass eine teilweise denitrierte Kollodiummembran vollkommen der Anforderung genügte, die Acetylcellulose völlig zurückzuhalten und die verschiedenen von uns benutzten Lösungsmittel durchzulassen.

Wir stellten uns dann die Aufgabe, Folgendes zu untersuchen:

10. ob die Gesetze des osmotischen Druckes auch für diese Lösungen gelten;

20. ob das Gewicht der Teilchen in verschiedenen Lösungsmitteln gleich oder ein verschiedenes ist;

30. ob die verschiedenen in den Handel gebrachten Sorten von Acetylcellulose (Cellit), die durch die Viskosität ihrer Lösungen stark von einander abweichen, auch verschiedene Teilchengrösse haben.

Aus dem erhaltenen umfangreichen Ziffernmaterial sind hier nur einige Ergebnisse herausgegriffen, die genügen werden, die von uns gezogenen

¹⁾ Dissertation. Amsterdam. 1930.

Schlüsse zu rechtfertigen. Die vollständigen Resultate und die Einzelheiten der Methode werden in der Dissertation SAMWEL's mitgeteilt werden.

Alle Versuche wurden mit Cellitmustern ausgeführt, die uns von zwei Abteilungen der I. G. Farbenindustrie in Elberfeld und Leverkusen zur Verfügung gestellt wurden, deren Direktion wir anlässlich dieser Gelegenheit unseren verbindlichen Dank für ihr freundliches Entgegenkommen aussprechen. Laut Angabe der Fabrik weisen diese Muster eine nahezu gleiche Zusammensetzung auf. Die Muster A enthalten 53 % Essigsäure, die Muster B 55 % Essigsäure, was zu einer Formel mit 2.3 bzw. 2.4 Acetylgruppen per Gruppe $C_6H_{10}O_5$ führt.

Zwecks Beantwortung der ersten obengenannten Frage wurde untersucht, ob der osmotische Druck der Konzentration und der absoluten Temperatur proportional war. Einige Resultate sind in den nachstehenden Tabellen zusammengestellt.

Cellit A 3		Lösungsmittel: Aceton	Temperatur 40°
Konzentration in g per 100 ccm Aceton		Osmotischer Druck in cm Wasser, P	P/c
1		7.6	7.6
3		23.5	7.8
5		37.4	7.5

Cellit A 5		Lösungsmittel: Aceton	Temperatur 40°
Konzentration in g per 100 ccm Aceton		Osmotischer Druck in cm Wasser, P	P/c
1		6.3	6.3
3		19.6	6.5
5		31.0	6.2

Cellit B 2		Lösungsmittel: Acetophenon	Temperatur 60°
Konzentration in g per 100 ccm Acetophenon		Osmotischer Druck in cm Wasser, P	P/c
1		9.5	9.5
3		30.0	10.0
5		45.5	9.1

Cellit B 2	Lösungsmittel: Aceton	Temperatur 20°
Konzentration in g per 100 ccm Aceton	Osmotischer Druck in cm Wasser, P	P/c
1	8.0	8.0
3	25.2	8.4
5	52.6	10.5

Cellit B 2	Lösungsmittel: Aceton	Temperatur 0°
Konzentration in g per 100 ccm Aceton	Osmotischer Druck in cm Wasser, P	P/c
1	6.4	6.4
3	22.6	7.5
5	42.0	8.4

Während aus den drei ersten Tabellen Proportionalität zwischen Konzentration und osmotischem Druck gefolgert werden kann, stösst man bei den Ergebnissen der letzten Tabellen auf Abweichungen und zwar in dem Sinne, dass der osmotische Druck stärker als die Konzentration zunimmt. Obwohl nicht zu erklären ist, warum bei einigen Lösungen keine Abweichungen beobachtet wurden, bei anderen dagegen wohl, möge darauf hingewiesen werden, dass Abweichungen im gleichen Sinne bei anderen kolloidalen Lösungen (u.a. Hämoglobin, Kautschuk) schon eher wahrgenommen sind.

Nach VAN 'T HOFF muss der osmotische Druck bei Temperaturerhöhung zunehmen und zwar um etwa 7 % per 20°. Bei verschiedenen Versuchen fanden wir diese Regel bestätigt; bei einer grösseren Anzahl aber erwies sie sich nicht als zutreffend. Sogar kam es oft vor, dass der osmotische Druck bei Steigen der Temperatur abnahm. Auch dieses Verhalten ist indessen nicht ganz ohne Analogie; Andeutungen hiervon wurden schon bei Eisenhydroxydsolen von DUCLAUX und bei Zuckerlösungen von MORSE und FRASER gefunden.

Will man diese Abweichungen erklären, dann sind zwei Möglichkeiten ins Auge zu fassen. Zunächst kann man daran denken, dass die gelösten Teilchen einen Teil des Lösungsmittels an sich ziehen, wodurch das freie Volumen, in welchem sich die aufgelösten Teilchen bewegen, verkleinert und daher die Konzentration vergrössert wird. Dies wird ein stärkeres Steigen des Druckes mit der Konzentration als das theoretische zur Folge haben, ebenso wie eine Abnahme des Druckes mit Erhöhung der Tempe-

ratur, wenn wir ausserdem annehmen, — was durchaus plausibel ist —, dass das Quantum Lösungsmittel, welches durch die gelösten Teilchen gebunden wird, bei höherer Temperatur abnimmt. Bei niedrigerer Temperatur wird sich der gefundene osmotische Druck dann als zu hoch erweisen.

In der Tat stehen im allgemeinen unsere Resultate bei 40° und 60° besser mit der Theorie im Einklange als die bei 0° und 20° erzielten. Dies würde also eine Stütze für die soeben dargelegte Ansicht sein. Um sie näher zu prüfen, haben wir in Anschluss an einen zuerst von GORTNER¹⁾ entwickelten Gedanken versucht, ob mittels der durch einen gelösten Stoff im Lösungsmittel herbeigeführten Gefrierpunktserniedrigung bewiesen werden könne, dass ein Teil des Lösungsmittels an die Acetylcelluloseteilchen gebunden und dadurch seiner Funktion als Lösungsmittel entzogen war.

Für diesen Versuch konnte nur Acetophenon als Lösungsmittel in Betracht kommen, da unter den verwandten Lösungsmitteln nur dieser Stoff einen Gefrierpunkt bei geeigneter Temperatur hat, nämlich 20°. Als gelöster Stoff wurde Naphtalin gewählt. Dieses wurde einerseits in reinem Acetophenon, anderseits in Lösungen von Cellit in Acetophenon von verschiedener Konzentration gelöst. Man konnte nunmehr das in der letzteren Lösung konstatierte Sinken des Gefrierpunktes mit demjenigen vergleichen, das in einer gleich stark konzentrierten Lösung im reinen Lösungsmittel beobachtet wurde. Das Ergebnis war folgendes:

Cellit	1 % B 2	3 % B 2	1 % B 2	3 % B 3
ΔT beobachtet	0°.712	0°.742	0°.699	0°.721
ΔT berechnet	.708	.735	.697	.717

Die zwischen berechnetem und beobachtetem Wert bestehenden Unterschiede übertreffen kaum die Fehler der Messung, doch in Anbetracht der Tatsache, dass die Abweichungen immer in derselben Richtung liegen und die 3 %-igen Cellitlösungen einen grösseren Effekt aufweisen als die 1 %-igen Lösungen, glauben wir, dass in der Tat etwas Lösungsmittel an die Celliteilchen gebunden wird. Jedoch ist diese Menge sehr klein; die Konzentration, bezogen auf das freie Lösungsmittel, wird nur $\frac{1}{2}\%$ grösser. Dies ist in keinem Falle hinreichend, die Abweichungen des VAN 'T HOFF'schen Gesetzes zu erklären.

Die andere Erklärungsmöglichkeit, an die wir dachten, ist diese: dass Lösungen derartig hochmolekularer Stoffe, wie wir benutzten, wie verdünnt diese auch waren, doch nicht mehr als verdünnte Lösungen sollten betrachtet werden dürfen. Obgleich sich in der Tat Argumente für diese Auffassung anführen lassen, ist es klar, dass sie dann auch Abweichungen

¹⁾ Bot. Gaz. 74, 442, 1922.

für jede Lösung verlangen würde, während sich gerade gezeigt hat, dass es auch Lösungen gibt, deren Verhalten der Theorie entspricht. In diesem Zusammenhang möge bemerkt werden, dass sich besonders die Lösungen in Aceton unregelmässig verhalten.

Was die zweite gestellte Frage betrifft, diejenige der Teilchengrösse in verschiedenen Lösungsmitteln, vermochten wir nachzuweisen, dass diese Grösse in der Tat praktisch gleich ist. Um die Teilchengrösse zu berechnen, haben wir den üblichen Weg beschritten, indem wir den osmotischen Druck einer molären Lösung auf 22.4 Atmosphären bei 0° stellten. Die Konzentration rechneten wir immer per 1000 ccm. Lösungsmittel. Wir lassen eine Tabelle folgen:

Temperatur 40°
 $\frac{M}{1000}$ für Lösungen von 30.7 g Cellit in 1000 ccm Lösungsmittel.

	Aceton	Acetophenon	Benzylalkohol
Cellit A 3	34.7	35.3	34.0
„ B 2	35.8	32.6	35.5
„ B 3	35.3	32.6	34.4

Dieses Ergebnis scheint uns von besonderer Wichtigkeit, denn es zeigt, dass es sich bei allen diesen Lösungsmitteln um dieselben Teilchen handelt und dass sich mit Hilfe des osmotischen Druckes auch wirklich das Gewicht derselben bestimmen lässt. Wenn man fragt, was für Teilchen dies sind, dann halten wir es am wahrscheinlichsten, dass es Moleküle sind. Ohne auf diese Frage tiefer einzugehen, und andere Argumente, die wir für unsere Meinung haben, unberücksichtigt lassend, weisen wir nur darauf hin, dass bei etwaiger Neigung, die Teilchen als Mizellen, Molekularaggregate oder derartiges mehr aufzufassen, es nicht wahrscheinlich sein würde, dass die Moleküle sich in allen Lösungsmitteln zu Komplexen von praktisch derselben Grösse zusammenfügen sollten. Hinzu kommt ausserdem, dass gleich grosse Werte für M auch bei 20° und 60° gefunden werden.

Aus dieser Tabelle folgt schon, mit Bezug auf die dritte Frage, dass verschiedene Sorten von Cellit ziemlich dasselbe Molekulargewicht besitzen. Die uns übermittelten Muster wurden als Produkte geliefert, die verschiedenes Verhalten zeigen, insbesondere, was die Viskosität ihrer Lösungen anbelangt. Um zu zeigen, dass die Teilchengrösse, von einigen Ausnahmen abgesehen, wenig variiert, und kein Zusammenhang mit der Viskosität zu konstatieren ist, haben wir die gefundenen Molekulargewichte und die Viskositäten in einer Tabelle vereinigt. Die Viskosität wurde mittels eines OSTWALD'schen Viskosimeters an einer Lösung von 1 g in

100 ccm. Lösung bestimmt und auf das reine Lösungsmittel bezogen; (somit wird die sogenannte relative Viskosität angegeben).

1 %ige Lösungen in Aceton bei 40°.

Cellit №.	A 1	A 2	A 3	A 4	B 2	A 5	A 6	A 7	A 8	A 9	B 3
$\frac{M}{1000}$	33.5	33.9	35.2	38.8	35.7	42.5	42.9	44.6	45.4	44.6	36.2
η	2.28	2.50	3.29	3.50	3.59	3.61	3.71	3.89	4.23	4.29	5.01

Die Folgerung ist klar: Ein Zusammenhang zwischen Viskosität und Molekulargewicht besteht nicht. Hierbei ist wohl daran zu denken, dass das, was wir Molekulargewicht nennen, nur das Gewicht derjenigen Menge Acetylcellulose ist, welche sich in einem selbständigen Teilchen vorfindet. Ein solches Teilchen möge, wie wohl allgemein angenommen wird, einen Solvatmantel haben; bei unseren Bestimmungen spielt dieser aber keine Rolle.

Noch auf eine andere Weise können wir unsere Folgerung bestätigen. Vergleichen wir nämlich die Viskositäten eines Cellitmusters bei verschiedenen Temperaturen und die entsprechenden Molekulargewichte, dann entsteht die folgende Tabelle:

Cellit B 3; 3 %ige Lösung in Aceton.

Temperatur	0°	20°	40°
$\frac{M}{1000}$	35.9	33.2	35.3
η	7.04	5.24	5.01

Auch hier findet man somit grosse Veränderung in der Viskosität ohne Veränderung des Molekulargewichtes. Die landläufige Meinung, dass ein hohes Molekulargewicht eines Stoffes eine grosse Viskosität seiner Lösungen mit sich bringe¹⁾, kann also im allgemeinen nicht richtig sein. Offenbar gibt es noch andere Faktoren, die auf die innere Reibung der Lösungen Einfluss ausüben.

*Anorganisch Chemisches Laboratorium.
Universität von Amsterdam.*

¹⁾ STAUDINGER, Koll. Zeitschr. 51, 71. 1930; MARK und FIKENTSCHER, Koll. Zeitschr. 49, 135, 1929.

Anatomy. — Evolution des centres diencéphaliques périventriculaires des Téléostomes. Par R. JEENER. (Assistant à l'Université de Bruxelles). (Travail de l'Institut Central hollandais pour l'étude du cerveau). (Communicated by Prof. C. U. ARIËNS KAPPERS).

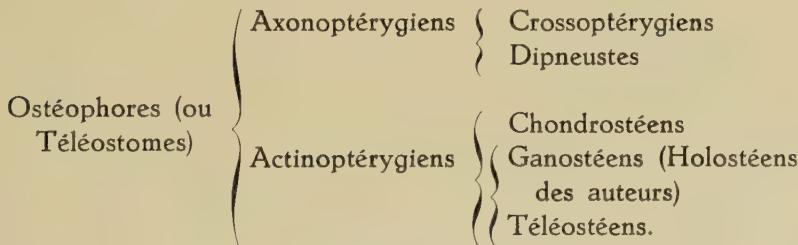
(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

Le présent travail a pour but :

1. l'établissement des homologies existant entre les divers centres périventriculaires du diencéphale des Téléostomes et les centres correspondants du diencéphale des Batraciens définis par HERRICK (1910, '17).

2. l'étude de l'évolution de ces centres à l'intérieur même du groupe des Téléostomes.

Pour atteindre ce second objectif, je m'appuyerai sur une conception de la systématique des Poissons qu'a exposée le Professeur AUG. LAMEERE (1927), dans son „Abrégé de la classification zoologique”. Je résume dans le tableau suivant la classification des groupes dont un ou plusieurs représentants vont être étudiés dans ce travail.



Il paraît certain que les Crossoptérygiens sont les seuls des Poissons actuellement connus à pouvoir être considérés comme les ancêtres des Amphibiens; nous avons en effet renoncé, depuis les études de DOLLO (1895) à rattacher ces derniers aux Dipneustes. Les Dipneustes constituent avec les Crossoptérygiens un ensemble qui doit être opposé à celui des Actinoptérygiens. Les plus primitifs des Actinoptérygiens se rattachent sans doute, ainsi qu'ABEL (1919) notamment en exprime l'idée, aux ancêtres des Crossoptérygiens.

I. *Axonoptérygiens.*

a. *Crossoptérygiens.* Matériel étudié: 1 série de coupes transversales de *Polypterus bichir* Geoffr. colorée à l'hématoxyline d'Apathy (fig. 1, A et B).

Des divers poissons qui seront étudiés dans ce travail, le Polyptère se rapproche le plus étroitement par les caractères de son diencéphale des Amphibiens et plus particulièrement des Anoures.

Examinons en effet une coupe transversale choisie au niveau de l'habenula (fig. 1 A). Nous y distinguerons sans aucune difficulté, outre les ganglions habénulaires (epithalamus), les trois zones décrites à ce niveau par HERRICK chez les Urodèles: pars dorsalis thalami, pars ventralis thalami, hypothalamus.

La pars dorsalis thalami et la pars ventralis constituent ensemble un croissant assez large et fort bien délimité, accolé par son bord interne à la paroi ventriculaire. Elles sont séparées l'une de l'autre par une zone dépourvue de cellules, s'étendant horizontalement depuis la paroi ventriculaire jusqu'à très près de leurs limites externes. Les cellules qui les constituent, petites mais ressortant nettement par leur coloration très intense, sont

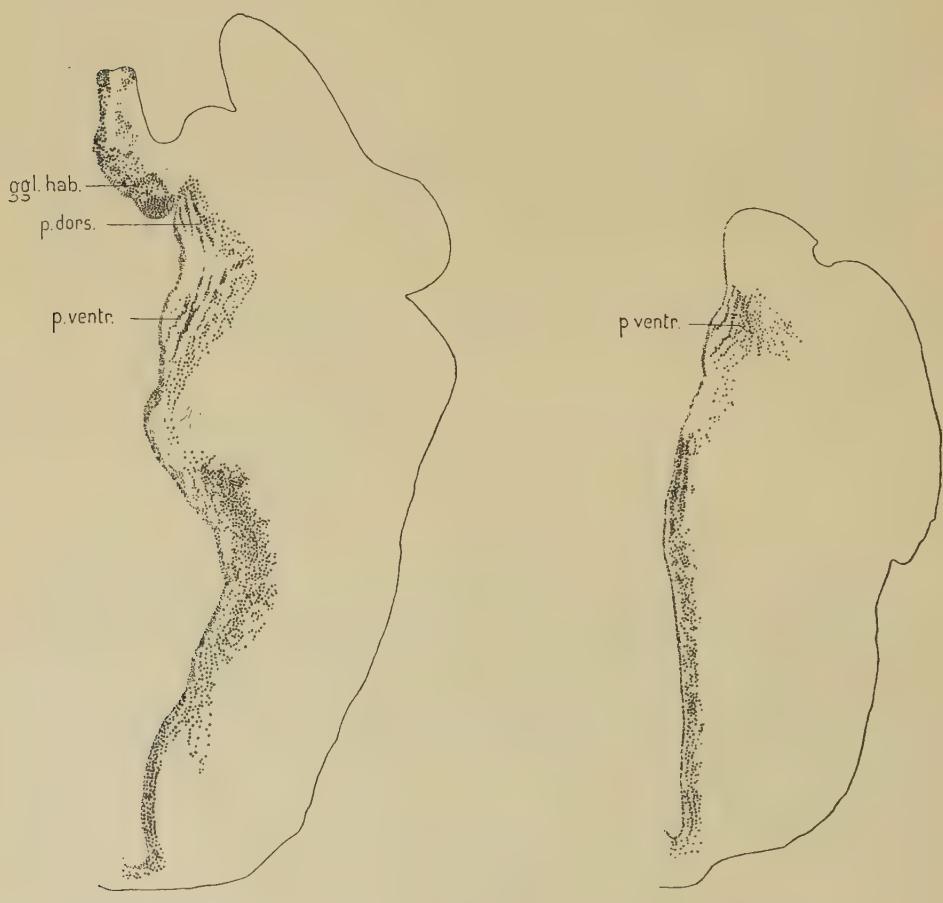


Fig. 1.
Polypterus bichir. Coupes transversales: A, au niveau des ganglions habénulaires; B, au niveau du prolongement antérieur de la pars ventralis thalami. Hématoxyline D'APATHY, $\times 23$.

disposées en plaques verticales parallèles, séparées les unes des autres par des zones exclusivement fibrillaires. A la limite externe de l'une et de l'autre région, cette structure régulière s'efface pour faire place à une disposition plus diffuse. Ces particularités sont identiques à celles que RÖTHIG (1923) a décrites et figurées avec beaucoup de précision dans le diencéphale des Anoures.

Au niveau de la coupe que nous venons d'examiner les deux régions étudiées ont un développement sensiblement égal. Si, partant de cette zone, nous suivons la série des coupes vers l'avant, nous verrons la pars dorsalis thalami perdre rapidement de son importance et disparaître au niveau de l'extrémité antérieure des ganglions habénulaires.

La pars ventralis au contraire se continue jusque dans le télencéphale, où on la retrouve entre le prolongement antérieur du nucleus preopticus et la couche de cellules serrées et fortement colorées qui tapisse toute la région extroversée de cette partie du cerveau.

Ce prolongement antérieur de la pars ventralis correspond vraisemblablement par sa région télencéphalique à l'area somatica de JOHNSTON, par sa région diencéphalique à l'eminentia thalami des Urodèles.

Suivons maintenant la série de coupes vers l'arrière : nous voyons, à l'inverse de ce qui se passe vers l'avant, la région dorsale conserver longtemps son aspect, alors que les cellules de la région ventrale diminuent de nombre et se confondent avec les éléments voisins.

La disposition des sillons ventriculaires est trop peu distincte dans la série étudiée, pour que je puisse leur attribuer une grande importance dans l'interprétation que je viens de donner. Seul le sulcus dorsalis est bien net sur toutes les coupes. J'ai pu en outre observer d'un côté le sulcus ventralis. Le sulcus medius est indistinct, sauf au niveau de l'extrémité antérieure de la pars dorsalis.

Un point de repère important nous est fourni par le fasciculus retroflexus que nous retrouvons, immédiatement au-dessus et en arrière de la pars dorsalis.

b. Dipneustes. Matériel étudié: 1 série de coupes transversales de *Protopterus annectens* (OWEN), hématoxyline d'Apathy; 1 série de coupes transversales alternantes de *Neoceratodus forsteri* (KREFFT), WEIGERT-PAL-paracarmine et VAN GIESON.

Protopterus annectens (fig. 2 A). Les éléments constitutifs du thalamus, décrits ci-dessus chez le *Polypterus*, se retrouvent sans aucune difficulté chez *Protopterus*. Un sulcus medius sépare la pars ventralis de la pars dorsalis. Cette dernière est délimitée dorsalement par un sulcus dorsalis net. Le sulcus ventralis est indistinct. La disposition des cellules suffirait d'ailleurs à caractériser les diverses régions tant elles sont différentes par l'aspect histologique.

La masse fibrillaire externe de la pars dorsalis a pris un développement si considérable que cette région constitue un lobe extrêmement bien différencié, proéminent largement dans la cavité du troisième ventricule.

Les cellules de la pars dorsalis se sont réparties en une couche peu épaisse tout le long de la paroi interne de ce lobe. Elles ont conservé dorsalement la disposition en plaques parallèles, mais l'ont perdue ventralement.

La pars ventralis s'est différenciée dans une toute autre direction. La masse fibrillaire externe qui lui correspond ne s'est nullement développée. Ses cellules ont diminué de nombre et constituent une sorte de quadrilatère

accolé par une de ses faces à la paroi épendymaire. Celle-ci ne s'enfonce pas, à ce niveau, dans la cavité du troisième ventricule.

Tout comme chez le Polypète, la pars ventralis se continue loin en avant de la pars dorsalis, mais son prolongement antérieur est moins distinct des éléments environnants.

Neoceratodus forsteri (fig. 2 B). La distinction d'une pars dorsalis et d'une pars ventralis thalami homologues aux régions correspondantes des Amphibiens peut-être faite aisément chez cet animal.

Ceratodus exagère simplement, en ce qui concerne la thalamus, les caractères présentés par le Protoptère. La pars dorsalis est en effet proportionnellement plus d'éveloppée,

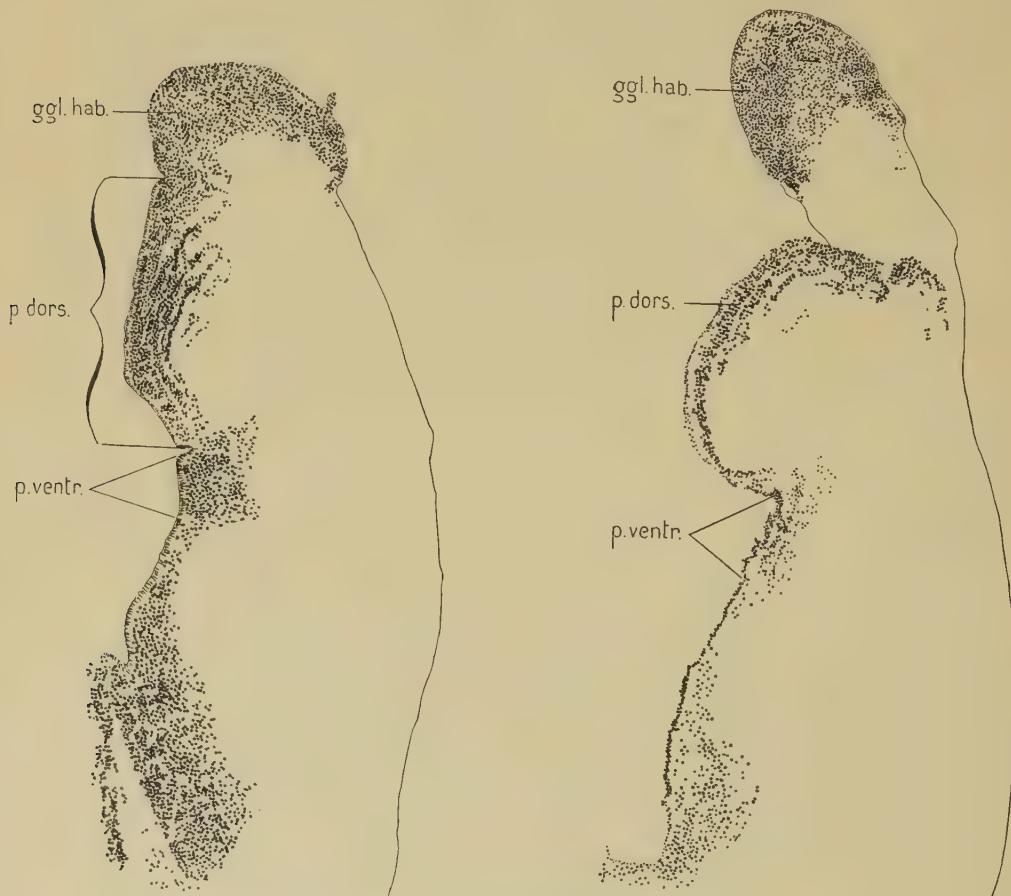


Fig. 2.
Coupes transversales dans le diencéphale de *Protopterus annectens* (A)
(hématoxyline D'APATHY) et de *Neoceratodus forsteri* (B). $\times 23$.

la pars ventralis plus réduite chez le premier que chez le second. Au développement plus grand de la masse fibrillaire de la pars dorsalis correspond un étalement complet des cellules en une couche uniforme tapissant la paroi épendymaire.

Les préparations au WEIGERT-PAL dont je dispose pour l'étude de *Ceratodus*, montrent

nettement que la masse fibrillaire de la pars ventralis, envahie par des fibres myélinisées d'origines variées, limitée extérieurement par la commissura transversa, ne se différencie nullement en un neuropile spécialisé comme la masse fibrillaire correspondante de la pars dorsalis.

Une particularité importante sur laquelle j'aurai l'occasion de revenir en étudiant les Téléostéens est que la stria medullaris, pénétrant dans le diencéphale, suit un trajet horizontal, au sein de la masse fibrillaire de la pars ventralis avant de se rendre, en traversant la pars dorsalis de part en part, dans la région habénulaire. Notons de plus que de nombreuses fibres, appartenant à la commissura transversa pénètrent à ce niveau dans la pars ventralis thalami.

L'interprétation qui vient d'être donnée de la valeur morphologique des diverses régions du diencéphale des Dipneustes est identique à celle qu'ont défendue HOLMGREN et VAN DER HORST (1925), dans leur monographie du *Ceratodus*. KUHLENBECK (1929) qui ne cite pas ce mémoire, en est arrivé à des conclusions différentes. Cet auteur considère la région du diencéphale de *Protopterus*, qui est, de toute évidence, homologue à la pars dorsalis thalami, comme une partie de l'épithalamus. Le sulcus medius devient dès lors pour lui un sulcus dorsalis. KUHLENBECK croit néanmoins pouvoir distinguer nettement dans la région du diencéphale du Protoptère située ventralement au sulcus medius, la pars dorsalis, la pars ventralis et l'hypothalamus.

II. *Actinoptérygiens.*

a. *Chondrostéens*. Matériel étudié : *Acipenser ruthenus* L., I série alternante de coupes transversales colorée par les méthodes de WEIGERT-PAL-paracarmine et de VAN GIESON.

L'évolution du thalamus des Actinoptérygiens semble avoir suivi, en ce qui concerne les noyaux périventriculaires tout au moins, une voie parallèle à celle que nous venons d'étudier chez les Axonoptérygiens. Elle a pour point de départ le thalamus d'*Acipenser* qui présente les analogies les plus étroites avec celui du Polyptère, le plus primitif des Axonoptérygiens.

Ces analogies portent essentiellement sur les faits suivants :

1^o. L'aspect histologique de la pars dorsalis et de la pars ventralis décrit chez *Polypterus* se retrouve chez *Acipenser*, à cette différence près que les plaques cellulaires parallèles sont un peu moins nettement marquées chez *Acipenser*.

2^o. Pas plus chez *Acipenser* que chez *Polypterus* n'existent les différences structurales profondes que nous avons vu apparaître entre la pars dorsalis et la pars ventralis dans les formes supérieures du groupe des Axonoptérygiens (cfr. le développement excessif de la pars dorsalis chez les Dipneustes) et que nous retrouverons dans celles du groupe des Actinoptérygiens (cfr. les Téléostéens).

3^o. Chez *Acipenser*, tout comme chez *Polypterus*, la pars ventralis thalami se continue dans le télencéphale par une zone cellulaire parfaitement distincte appartenant vraisemblablement à l'area somatica de JOHNSTON, la pars dorsalis thalami s'arrêtant au contraire vers l'avant au niveau de l'extrémité antérieure du ganglion habenulæ.

Comparons ces données à celles des auteurs précédents. JOHNSTON (1901) et HERRICK (1922) ne distinguent pas la pars dorsalis de la pars ventralis chez *Acipenser*. Melle. HOCKEY HOOGENBOOM (1929) décrit chez *Polyodon folium* un sulcus medius mais

n'a pas distingué les masses cellulaires correspondant à la pars dorsalis et à la pars ventralis thalami de HERRICK.

b. Holostéens. Matériel étudié: *Amia calva* L., 1 série alternante de coupes transversales colorée par les méthodes de WEIGERT-PAL-paracarmine et de VAN GIESON (fig. 3, A et B).

Le thalamus de *Amia calva* occupe une position intermédiaire entre celui

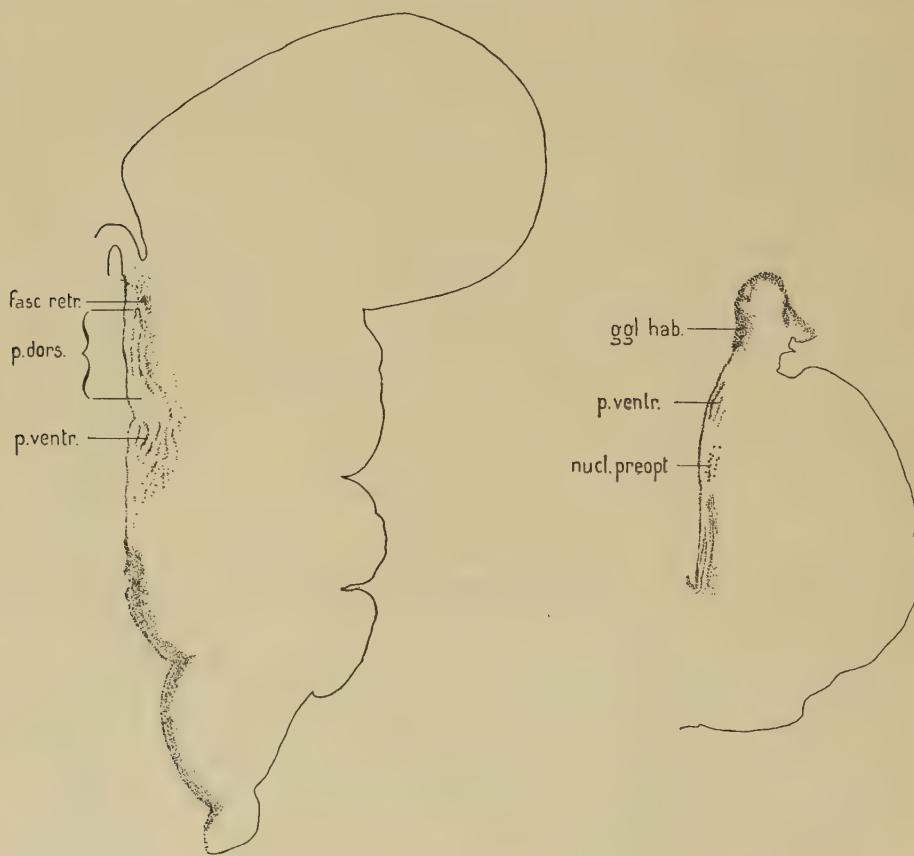


Fig. 3.
Amia calva. Coupes transversales dans le diencéphale, passant, coupe A, par la pars ventralis et la pars dorsalis thalami, coupe B, par le prolongement antérieur de la pars ventralis. VAN GIESON, $\times 15$.

de *Acipenser* et celui des Téléostéens. Il acquiert de ce fait un grand intérêt pour notre étude.

Ses analogies avec le thalamus du Polyptère sautent immédiatement aux yeux. La pars dorsalis et la pars ventralis, d'importance à peu près égale, constituent en effet, comme chez le Polyptère un croissant accolé à la paroi du troisième ventricule. Les cellules de ces deux régions sont disposées en plaques parallèles interrompues au niveau du sulcus medius qui n'apparaît que dans quelques coupes.

La pars ventralis thalami est nettement distincte du nucleus preopticus dont la région dorsale est différenciée en une pars magnocellularis caractéristique. Ce fait jouera un rôle dans l'interprétation du thalamus des Téléostéens.

Comme dans toutes les formes précédentes, le fasciculus retroflexus passe dorsalement à la pars dorsalis.

Par ces divers caractères, le thalamus d'*Amia* se relie à celui des formes plus primitives que nous avons étudiées.

Quels sont ceux par lesquels il s'oriente dans la voie que suivront les Téléostéens ? J'en distingue trois :

1^o. l'apparition de différences anatomiques profondes entre la pars dorsalis et la pars ventralis thalami : les cellules de la pars ventralis constituent des rangées plus courtes, plus nombreuses et s'enfonçant plus profondément dans la paroi du diencéphale ; celles de la pars dorsalis en constituent de longues, moins nombreuses et légèrement recourbées contre la face interne d'une région plus ou moins différenciée de la masse fibrillaire correspondante. Cette différenciation est absolument nette et rappelle celle que j'ai signalée en étudiant le thalamus des Dipneustes (comparez la fig. 2 A et B et 3 A).

2^o. la disparition des relations de continuité, existant chez les formes primitives telles que *Polypterus* et *Acipenser*, entre les cellules de la pars ventralis thalami et celle de l'area somatica.

3^o. le début de la différenciation d'une eminentia thalami aux dépens du prolongement antérieur de la pars ventralis.

En ce qui concerne ce dernier caractère quelques précisions sont nécessaires. Des préparations au WEIGERT-PAL m'ont montré que l'eminentia thalami, ébauchée chez *Amia* est séparée du tractus opticus, qui la longe extérieurement, par un faisceau très caractéristique de fibrae tectales nervi optici. Ce faisceau a de toute évidence des relations étroites avec l'eminentia thalami dans laquelle on peut voir pénétrer d'autre part des fibres myélinisées assez nombreuses issues de l'habenula.

Ces connexions seront étudiées avec plus de détails chez les Téléostéens. Il est important de noter dès maintenant qu'elles n'entraînent pas chez *Amia* la spécialisation d'une zone aussi distincte topographiquement que chez les Téléostéens. Aussi, pouvons nous dans le cas d'*Amia*, nous persuader sans peine de ce que la région considérée est en continuité complète avec le reste de la pars ventralis thalami.

Il apparaît d'autre part chez *Amia* que l'eminentia thalami est complètement séparée de la pars dorsalis thalami ; cette séparation est plus nette ici que chez les Téléostéens.

c. *Téléostéens*. Matériel étudié : séries de coupes transversales colorées au WEIGERT-PAL-paracarmine de *Idus idus* (L.), *Mormyrus Caschive*, *Clupea harengus* (L.), *Osmerus eperlanus* (L.), *Perca fluviatilis* (L.), *Pleuronectes limanda* (L.), *Motella mustela* (L.); à l'hématoxyline d'Apathy, de *Idus*

idus (L.); au Cajal, de *Perca fluviatilis* (L.); au Nissl, de *Carassius auratus* (L.).

Parmi les diverses séries de coupes énumérées ci-dessus, celle qui m'a rendu le plus de services est une série de *Idus idus* traitée par la méthode de WEIGERT-PAL-paracarmine et différenciée de telle façon que les masses de neuropile y apparaissent légèrement colorées par l'hématoxyline (fig. 5 et 6). Son étude, complétée par l'examen d'une série de coupes de même animal colorée par la méthode d'Apathy (fig. 4 A & B) servira de base à ma description.

Le thalamus des Téléostéens est construit suivant un plan général identique à celui des Amphibiens. Il comprend une zone périventriculaire faite de cellules et de fibres pour la plupart non myélinisées, une zone extérieure

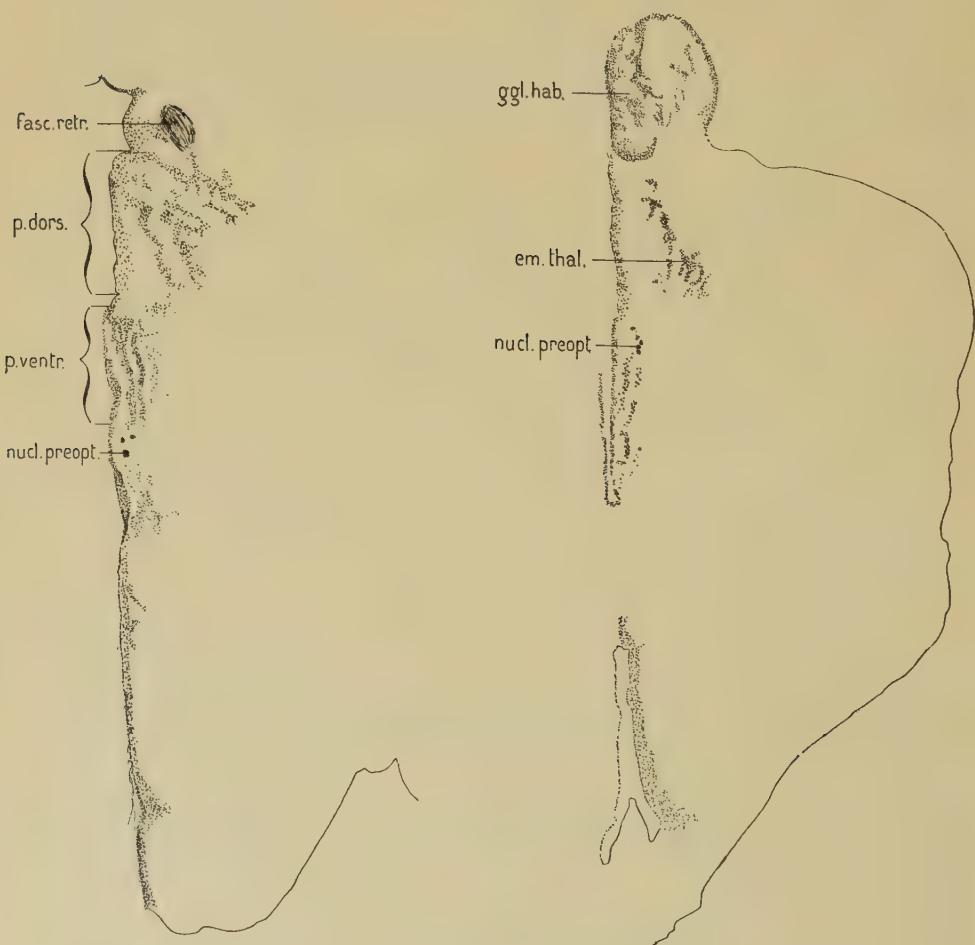


Fig. 4.

Idus idus. Coupes transversales dans le diencéphale passant: coupe A par la pars ventralis et la pars dorsalis thalami; coupe B, par le prolongement antérieur de la pars ventralis. Hématoxyline D'APATHY, $\times 23$.

à la première encombrée de fibres myélinisées, pauvre en cellules et où se différencient toute une série de centres secondaires tels que le nucleus rotundus, le corpus geniculatum etc.....

De ces deux zones l'interne seule nous préoccupera. Elle comprend dorsolement la région habénulaire et la pars intercalaris diencephali, ventralement le nucleus preopticus suivi de la région périventriculaire de l'hypothalamus, entre ces deux régions enfin, un complexe de trois noyaux homologues respectivement à la pars dorsalis thalami, à la pars ventralis thalami et au prolongement antérieur de cette dernière, que nous avons distingué déjà chez les Axonoptérygiens, les Crossoptérygiens et Dipneustes, les Chondrostéens et les Holostéens.

Parmi ces divers noyaux celui qui correspond à la pars dorsalis a déjà attiré l'attention de plusieurs auteurs. L'étude critique de l'interprétation qu'ils ont donnée à leurs observations sera faite à la fin de ce travail.

Pars dorsalis thalami.

Cette région qui atteint chez *Idus idus* une longueur de 1 mm et ressort comme une tache claire sur fond sombre dans les préparations colorées au WEIGERT-PAL, attire immédiatement l'attention par sa grande taille et la netteté de ses contours (fig. 4 et 5). Sa limite dorsale est marquée par le sulcus dorsalis, qui la sépare de la pars intercalaris diencephali. La région inférieure de la pars intercalaris est occupée par la portion horizontale du fasciculus retroflexus qui, ici comme partout ailleurs, marque donc la limite supérieure de la pars dorsalis. Il en marque également la limite postérieure en se recourbant ventralement immédiatement en arrière d'elle. Le sulcus medius qui devrait marquer la limite ventrale de la pars dorsalis est assez indistinct, sauf sur un petit nombre de coupes. Nous n'avons heureusement nul besoin de lui, la structure histologique de la pars dorsalis suffisant à la définir clairement.

Antérieurement la pars dorsalis commence au niveau où le fasciculus retroflexus quitte le ganglion habénulaire, elle s'étend vers l'arrière jusqu'au niveau où les dernières fibres de la commissura posterior franchissent la ligne médiane.

L'espace ainsi délimité est occupé par un groupe de cellules pour la plupart assez petites, réparties en trois ou quatre plaques plus ou moins parallèles entre elles, tout comme chez *Polypterus* ou *Amia*. Ces plaques cellulaires sont noyées dans une masse de neuropile abondante qui les sépare largement les unes des autres.

Pars ventralis thalami.

Cette région est aussi distincte chez *Idus idus* que la pars dorsalis (fig. 4 A et 5). Elle est constituée comme cette dernière d'une masse de neuropile dans laquelle sont noyées des plaques cellulaires parallèles. Cette masse de neuropile étant infiniment moins développée que celle de la pars dorsalis, les plaques de cellules qu'elle contient se trouvent très rapprochées les unes

des autres. L'ensemble du noyau revêt une allure compacte, occupe une place restreinte, et se trouve intimement accolé à la paroi épendymaire. Par ces trois caractères il se différencie nettement de la pars dorsalis.

Dorsalement un large espace dépourvu de cellules et au niveau duquel apparaît sur certaines coupes le sulcus medius, sépare la pars ventralis de la pars dorsalis.

Un sulcus ventralis, aussi peu marqué que le sulcus medius, sépare ventralement la pars ventralis thalami du nucleus preopticus magnocellularis. La limite inférieure de la pars ventralis ressort bien plus nettement de la différence radicale de constitution histologique existant entre les deux régions voisines (voir fig. 4 A et B).

La pars ventralis proprement dite, c'est-à-dire tronquée de sa région antérieure différenciée que nous étudierons dans un instant, ne dépasse pas, vers l'avant, l'extrémité antérieure de la pars dorsalis. Sa longueur n'est que la moitié de celle de la pars dorsalis, qui s'étend beaucoup plus loin vers l'arrière.

Il est important de noter que le nucleus magnocellularis preopticus se prolonge vers l'arrière, tout le long du bord ventral de la pars ventralis thalami en une file étroite de cellules qui se renfle brusquement en un noyau assez volumineux immédiatement derrière la pars ventralis.

La pars ventralis thalami est bordée extérieurement par la zone périphérique riche en fibres myélinisées que j'ai signalée en commençant l'étude des Téléostéens. Certaines des cellules de la pars ventralis semblent être incluses dans cette zone mais elles constituent une infime minorité.

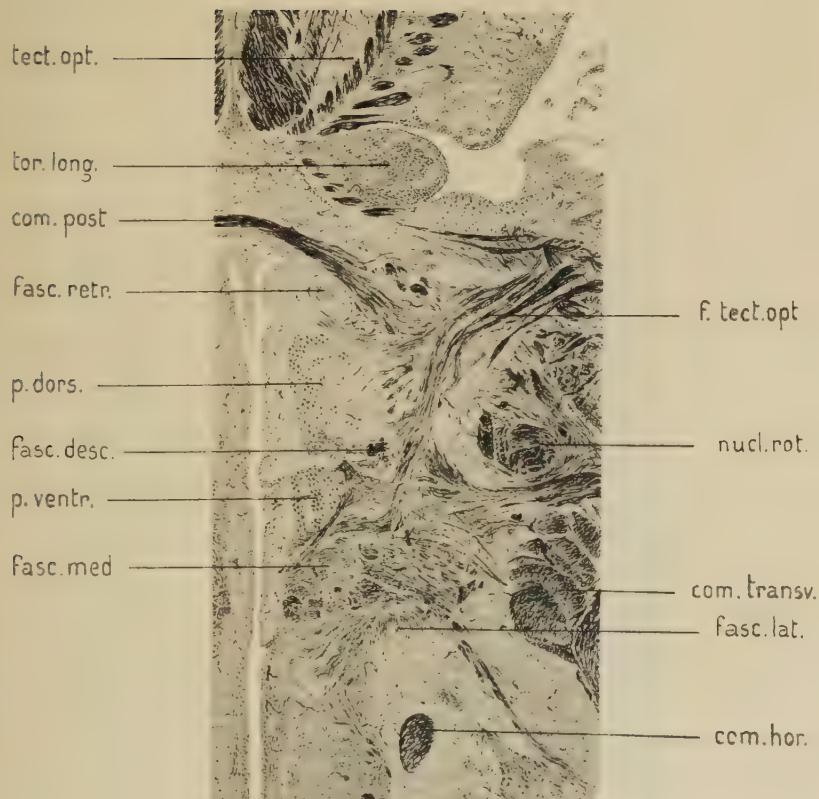
Eminentia thalami.

Le prolongement antérieur de la pars ventralis thalami signalé dans les divers types étudiés jusqu'à présent se retrouve chez les Téléostéens sous la forme d'une région spécialisée, parfaitement distincte du reste de la pars ventralis thalami. Je lui donnerai le nom d'*eminentia thalami* déjà employé par HERRICK (1917) pour désigner une région vraisemblablement homologue du cerveau des Amphibiens Urodèles et repris par KUHLENBECK (1929) pour désigner la même région chez tous les Anamniotes.

Le structure de l'*eminentia thalami* de *Idus idus* ressort clairement de l'examen de coupes choisies au niveau de la région moyenne des ganglions habénulaires (voir fig. 4 B et 6). Nous y voyons cette région encastrée entre le ganglion habénulaire, le fasciculus medialis telencephali, la paroi épendymaire et les fibrae tectales nervi optici.

Examinons sa structure en allant de l'intérieur vers l'extérieur. À une distance relativement considérable de la paroi épendymaire nous rencontrons d'abord une plaque verticale de cellules vivement colorées, arrondies, intimement accolées les unes aux autres. À cette première zone en succède une seconde occupée par des fibres myélinisées intimement intriquées. Une troisième zone, de fibres non myélinisées cette fois, mais colorées légèrement en brun par l'hématoxyline sépare ces deux premières couches des fibrae

R. JEENER: EVOLUTION DES CENTRES DIENCÉPHALIQUES PÉRIVENTRICULAIRES DES TÉLÉOSTOMES.



Idus idus. Coupe transversale dans le diencéphale, faite au niveau de la commissura posterior: WEIGERT-PAL — paracarmine, $\times 32$. f. tect. opt. = fibrae tectales nervi optici.

R. JEENER: EVOLUTION DES CENTRES DIENCÉPHALIQUES PÉRIVENTRICULAIRES DES TÉLÉOSTOMES.

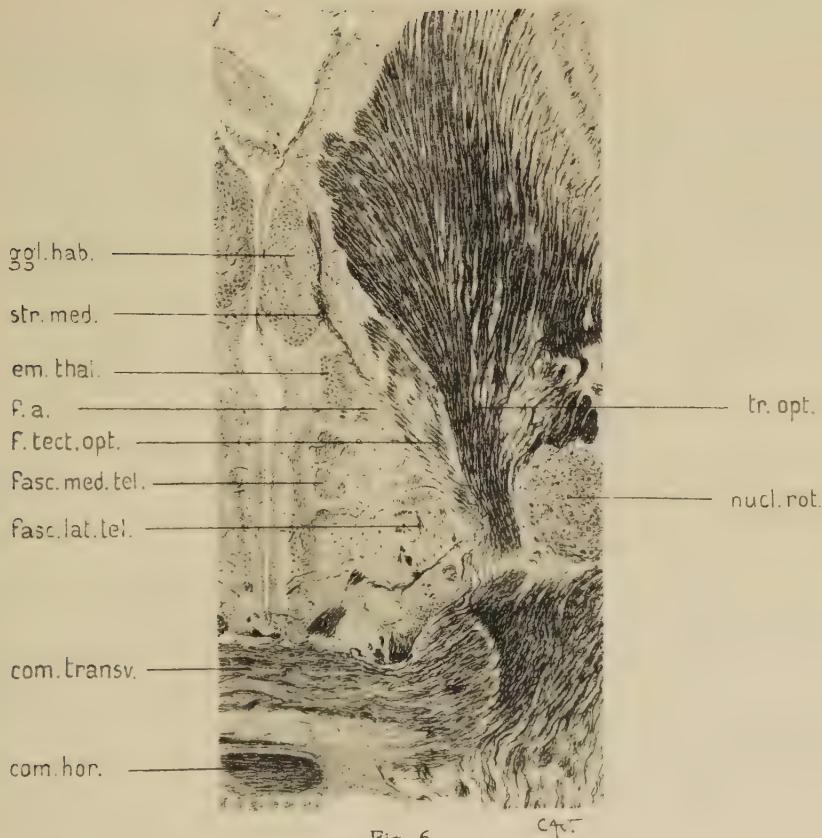
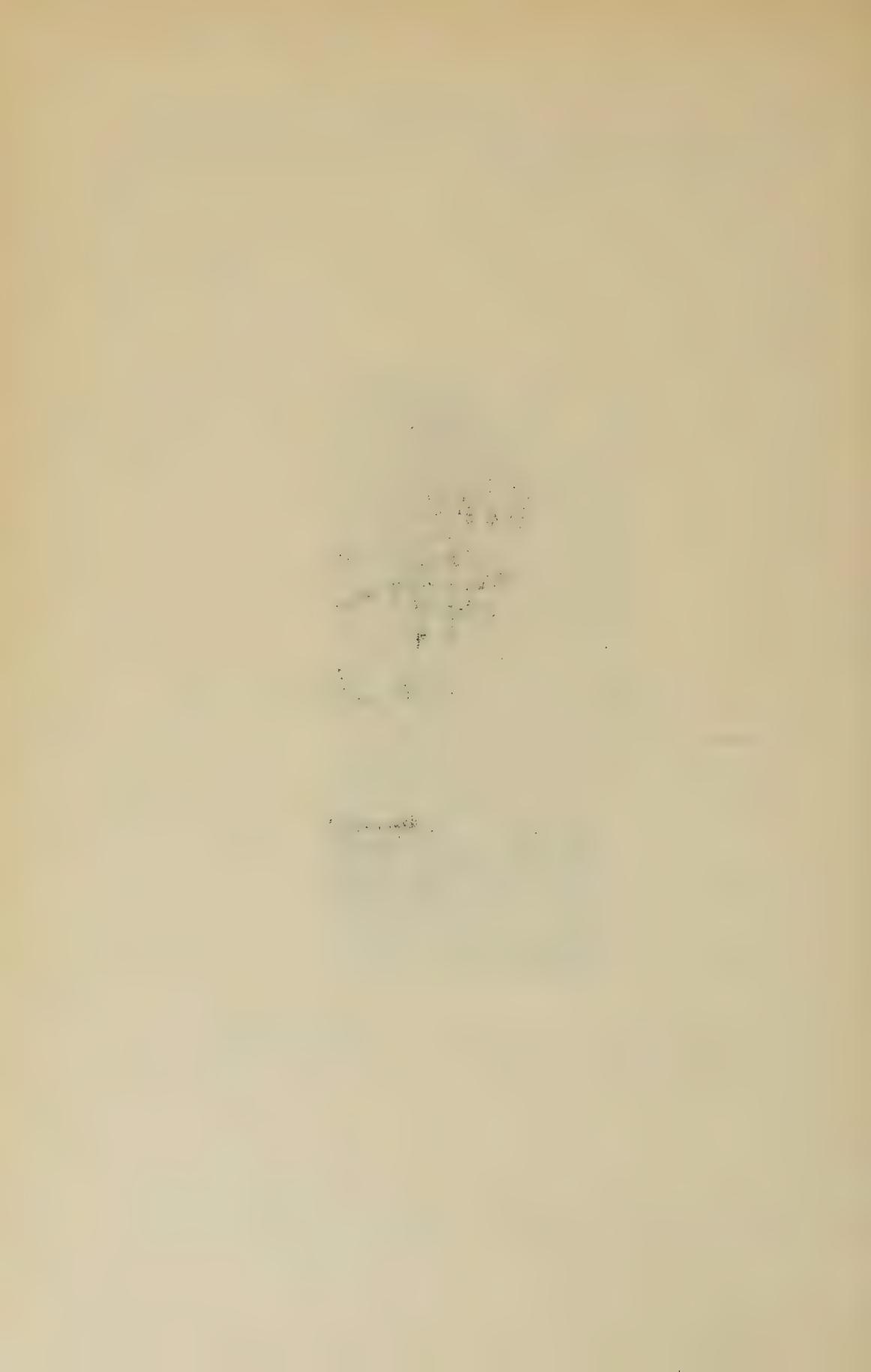


Fig. 6.

Idus idus. Coupe transversale dans le diencéphale faite au niveau des ganglions habénulaires. WEIGERT-PAL — paracarmine, $\times 32$. f.a. = fibres a de Sheldon allant de l'eminencia thalami au faisceau des f. tect. opt.



tectales nervi optici. Ces dernières constituant un large faisceau de fibres assez lâches, bordant extérieurement le diencéphale sur toute sa hauteur. Elles partent dorsalement du tectum opticum et pénètrent ventralement dans le chiasme optique, où je n'ai pu les suivre.

En arrière du niveau que nous venons d'examiner, l'eminentia thalami conserve la structure qui vient d'être décrite, on la voit s'insinuer sous l'extrémité antérieure de la pars dorsalis thalami et se mettre rapidement en relation avec la pars ventralis thalami par l'intermédiaire d'une région étroite et courte, pauvre en cellules.

En avant des ganglions habénulaires, l'aspect de l'eminentia thalami change notablement. Nous la trouvons en effet représentée par une masse homogène de fibres non myélinisées et de cellules, entourée dorsalement et extérieurement par les fibres de la stria medullaris.

Les connexions fibrillaires de l'eminentia thalami jouant un rôle particulièrement important dans la définition topographique de cette région du diencéphale, je crois utile de décrire dès à présent ce que j'ai pu observer à leur sujet par le seul emploi de la méthode de WEIGERT, réservant une description plus détaillée pour le travail que je me propose d'exécuter dans l'avenir à l'aide de la méthode de GOLGI.

Les relations de la stria medullaris avec l'eminentia thalami paraissent excessivement étroites. J'ai signalé déjà que les faisceaux de la stria medullaris entourent l'extrémité antérieure de l'eminentia thalami. En les suivant vers l'arrière, on les voit se recourber dorsalement et pénétrer dans la région habénulaire. A la face postérieure du faisceau vertical qu'ils constituent à ce moment, se trouvent accolées de nombreuses fibres myélinisées mettant en relations la région habénulaire avec l'eminentia thalami. Ces fibres forment un faisceau dense qui vient se perdre dans la couche de fibres myélinisées tapissant extérieurement la masse cellulaire de l'eminentia thalami. De plus, le neuropile de chaque ganglion habénulaire est en relation de continuité avec la couche fibrillaire non myélinisée sous-jacente de l'eminentia thalami.

Les relations de la stria medullaris avec le prolongement antérieur de la pars ventralis thalami, différencié ou non en une eminentia thalami distincte sont vraisemblablement un fait très général. Elles existent chez les Amphibiens Urodèles, ainsi que HERRICK (1917) l'a montré et sans doute aussi chez les Dipneustes (voir p. 757).

Une des connexions les plus caractéristiques de l'eminentia thalami est celle qui s'établit entre elle et le faisceau de fibrae tectales nervi optici par l'intermédiaire d'un grand nombre de fibres myélinisées horizontales (fig. 6).

Ces fibres ont été nettement distinguées par SHELDON (1912) qui les considère comme ayant leur cellule d'origine dans son „nucleus posthabenularis” et comme pénétrant tout au moins en apparence dans le tractus opticus. Elles pourraient être identifiées suivant SHELDON, aux fibres du tractus opticus décrites par HALLER (1898) comme issues de la région thalamique.

Les préparations dont j'ai disposé ne m'ont pas permis de préciser la valeur de ces

fibres. Ont-elles leurs cellules d'origine dans l'eminentia thalami, sont-elles au contraire afférentes: je ne saurais le dire. Le fait qu'elles se détachent perpendiculairement du faisceau des fibrae tectales nervi optici pourrait indiquer qu'il s'agit de collatérales de ce faisceau.

JANSEN (1929) a défendu, avec beaucoup de raisons je pense, l'idée que les fibrae tectales nervi optici n'ont rien de commun avec le tractus opticus. Il a constaté, en effet, en étudiant un *Idus idus* dont un des nerfs optiques avait dégénéré (préparations au WEIGERT-PAL) que le tractus opticus seul disparaissait d'un côté, les fibrae tectales nervi optici restant au contraire indemnes aussi bien du côté dégénéré que de l'autre.

Retenant l'étude des préparations de *Idus* qui ont servi aux observations de cet auteur j'ai pu faire une constatation identique pour ce qui concerne les fibres myélinisées horizontales unissant l'eminentia thalami au faisceau des fibrae tectales nervi optici. Comme on peut le voir sur la figure 7, ces fibres ont persisté du côté dégénéré tout comme les fibrae tectales nervi optici.

La conclusion à tirer de ce fait est que contrairement à l'opinion de HALLER (1898), admise avec beaucoup de réserves par SHELDON (1912), les fibres horizontales en question ne peuvent être considérées comme un composant efférent du tractus opticus.

JANSEN considère, avec raison sans doute, les fibrae tectales nervi optici comme une partie du complexe commissural postoptique. Les fibres horizontales qui pénètrent dans le faisceau de fibrae tectales seraient également, dans cette conception, un élément constitutif du complexe commissural postoptique.

L'eminentia thalami est en relations avec le nucleus preopticus par un faisceau de fibres non myélinisées extrêmement net, partant de la face interne de la couche cellulaire et s'étendant ventralement tout le long de la face médiane du fasciculus medialis telencephali.

Enfin j'ai pu suivre jusque dans l'eminentia thalami une partie des fibres du fasciculus descendens de BRICKNER (1929) qui, d'après cet auteur se met vers l'arrière en relations avec le fasciculus longitudinalis posterior et les cellules réticulaires mésencéphaliques. Voici en particulier, ce que j'ai observé chez *Idus idus*. Arrivé à l'extrémité antérieure de la masse fibrillaire myélinisée qui entoure la pars ventralis thalami, le fasciculus descendens jusqu'alors extrêmement net se divise en quatre ou cinq faisceaux qui se perdent dans la région postérieure de la zone des fibrae tectales nervi optici. Un de ces faisceaux, que j'ai pu suivre avec toute la certitude désirable, traverse la masse de neuropile séparant les fibrae tectales nervi optici de la zone interne de fibres myélinisées de l'eminentia thalami, et vient se perdre dans cette dernière zone.

La description que l'on vient de lire concerne spécialement un Cyprinide, *Idus idus*. Je me suis assuré par l'étude d'un Clupéide, *Clupea harengus* (L.), d'un Salmonide, *Osmerus eperlanus* (L.), d'un Mormyride, *Mormyrus Caschive*, que les caractères de *Idus idus* étaient pour le moins très répandus chez les Physostomes.

Les seules particularités que j'ai pu constater dans ces diverses formes sont les suivantes:

1. Les fibrae tectales nervi optici de *Clupea harengus* et de *Osmerus eperlanus* ménagent, au sein du faisceau lâche qu'elles constituent, un espace occupé par une masse allongée de neuropile, peu développée chez *Osmerus*, énorme au contraire chez *Clupea*. Il est possible que cette masse ait des rapports étroits avec l'eminentia thalami. J'ai vu

R. JEENER: EVOLUTION DES CENTRES DIENCÉPHALIQUES PÉRIVENTRICULAIRES DES TÉLÉOSTOMES.

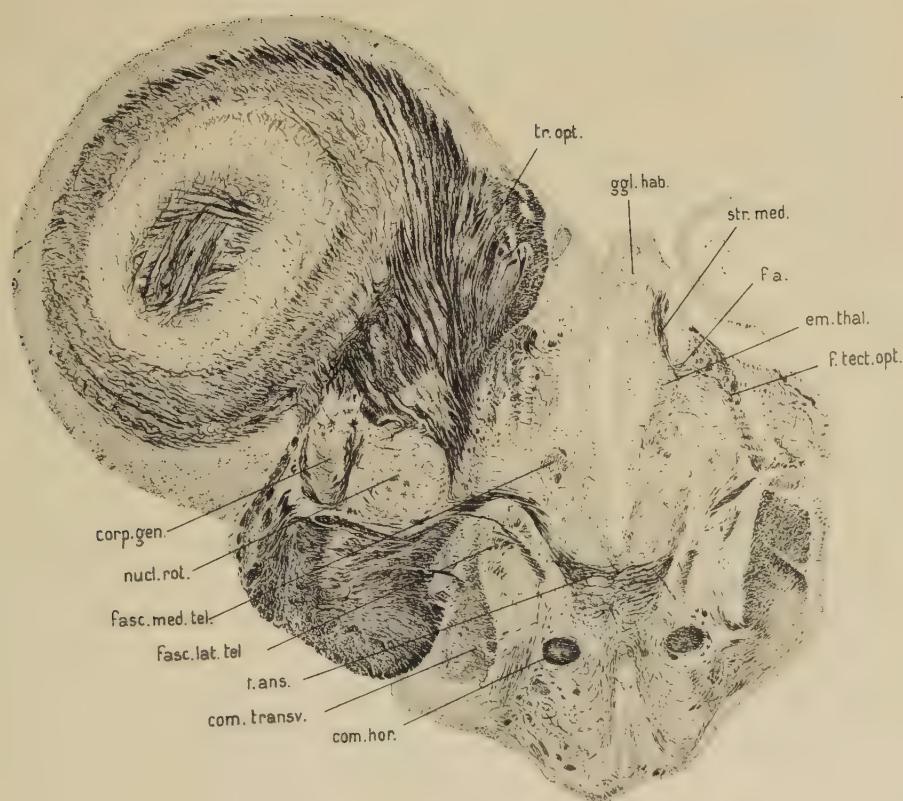


Fig. 7.

Idus idus, dont le tractus opticus droit a dégénéré. Coupe transversale passant au niveau des ganglions habénulaires. WEIGERT-PAL. (Mêmes abréviations que fig. 5 et 6).

en effet chez *Clupea* certaines des fibres myélinisées horizontales, en relations d'autre part avec l'*eminentia thalami*, y pénétrer.

2. Chez *Mormyrus caschive*, les cellules de la pars dorsalis thalami, de la pars ventralis, de l'*eminentia thalami*, au lieu d'être groupées en amas ou en plaques denses, se trouvent dispersées uniformément dans la masse fibrillaire des différents noyaux. Les limites de ceux-ci par rapport à la couche périphérique de fibres myélinisées sont moins nettement marquées que chez les autres Téléostéens étudiés. Enfin, on peut voir chez *Mormyrus*, la masse cellulaire de l'*eminentia* se continuer dans le reste de la pars ventralis sans qu'aucune solution de continuité n'intervienne. Il est possible que cette différenciation peu marquée du thalamus des Mormyrides soit en rapport avec le fait que ces poissons représentent vraisemblablement une branche spécialisée, issue de Physostomes très primitifs (FRANZ 1920).

A côté des Physostomes nous avons à considérer deux ensembles de formes plus évoluées : les Acanthoptérygiens, au sens large du mot et les Anacanthiniens.

Parmi les Acanthoptérygiens, j'ai choisi, pour en faire l'étude, deux formes appartenant à des familles éloignées : *Perca fluviatilis* L., et *Pleuronectes limanda* L. Toutes deux m'ont montré une organisation semblable à celle des *Idus idus* à quelques détails près. Chez *Perca* la couche cellulaire de l'*eminentia thalami*, beaucoup plus nettement séparée du reste de la pars ventralis que chez *Idus*, se continue vers l'avant par un noyau, parfaitement différencié qui rappelle par son aspect le *nucleus commissuræ hippocampi* des Anoures.

Enfin, j'ai retrouvé chez *Motella mustela* L., qui appartient au groupe des Anacanthiniens, une disposition des noyaux qui nous occupent fort semblable à celle qui a été décrite chez *Idus idus*.

Examen critique de la littérature.

Dans son traité d'anatomie comparée du système nerveux KAPPERS (1921) jette les premières bases de nos connaissances sur l'homologie des diverses régions du thalamus des Téléostéens avec les régions correspondantes des groupes voisins. Il distingue, en effet, chez eux, comme chez les autres Anamniotes un thalamus dorsal et un thalamus ventral, ces deux termes étant pris dans un sens large et servant à désigner un secteur tout entier de la paroi cérébrale. La limite médiale du secteur dorsal et du secteur ventral est marquée d'après KAPPERS par le *sulcus medius* de HERRICK (voir la figure 442 de son traité).

Cette conception a été reprise et précisée récemment par KUHLENBECK (1929) qui, s'appuyant principalement sur l'étude des sillons ventriculaires du diencéphale, distingue, outre les deux régions de KAPPERS, une *eminentia thalami* homologue à celle des Amphibiens.

J'en suis arrivé à une conception identique en me basant sur l'étude de l'évolution progressive des centres périventriculaires dans toute la série des Téléostomes. Les résultats de mon travail peuvent donc être considérés comme une confirmation des données de cet auteur. De plus, ils les complètent en montrant qu'au plan fondamental des sillons diencéphaliques distingué par lui, correspond une distribution définie des centres périventriculaires.

Etant donné la confusion qui règne dans la nomenclature des diverses régions du diencéphale des Téléostéens, je crois utile de préciser la synonymie de celles qui ont été décrites dans le présent travail.

Pars dorsalis thalami: Les caractères de cette région sont suffisamment nets pour que nous puissions déterminer avec certitude sa synonymie. CATOIS (1901), GOLDSTEIN (1905), BRICKNER (1929) la décrivent très clairement; le premier sous le nom de „noyau antérieur du thalamus”, le second sous celui de „posthabenuläre Zwischenhirngebiet”, le troisième sous celui de „Innersegment of the dorsal thalamus”. SHELDON (1912) confond en un même noyau la pars dorsalis thalami et l’eminentia thalami. Ainsi que KUHLENBECK (1929) l’indique, HOLMGREN (1920) groupe sous le nom d’eminentia thalami la région homologue à l’eminentia thalami des Amphibiens, la pars dorsalis, la pars ventralis et la pars intercalaris thalami.

BRICKNER (1929) homologue avec raison son „Inner segment of the dorsal thalamus” à la pars dorsalis thalami des Amphibiens.

JANSEN (1929) a proposé récemment d’homologuer l’eminentia thalami de HOLMGREN au nucleus de BELLONCI des Amphibiens. Son argument essentiel est l’analogie qui lui paraît exister entre les connexions des fibres optiques des Batraciens avec le nucleus de BELLONCI et celle qu’établit le tractus optico-eminentialis décrit par HOLMGREN (1920) chez les Téléostéens.

Le tractus optico-eminentialis établissant une connexion entre le tractus opticus et une région du diencéphale qui doit être considérée comme homologue à la pars dorsalis thalami des Amphibiens dont le nucleus de BELLONCI fait partie, l’opinion de JANSEN est justifiée jusqu’à un certain point. Mais il est évident que l’on ferait erreur en considérant l’ensemble de l’eminentia thalami de HOLMGREN, c’est-à-dire la pars intercalaris, la pars dorsalis, la pars ventralis, l’eminentia thalami, comme homologue au nucleus de BELLONCI, qui n’est chez les Batraciens qu’une petite partie de la pars dorsalis.

Eminentia thalami.

KUHLENBECK a été le premier à préciser la position de l’eminentia thalami chez les Téléostéens.

Pars ventralis thalami.

Ce noyau me paraît avoir échappé à l’attention de tous les auteurs, à l’exception de KAPPERS (1921, page 823) qui signale, dorsalement au nucleus preopticus magnocellularis et au voisinage immédiat du sulcus medius, „eine parvocelluläre Fortsetzung des Nucleus magnocellularis”. C’est bien en cet endroit que se trouve mon noyau, mais l’opinion de KAPPERS sur sa signification me semble en désaccord avec ce que j’ai observé chez les Téléostomes plus primitifs que les Téléostéens. Chez tous la pars ventralis thalami et le nucleus magnocellularis sont nettement distincts. Un nucleus ventralis limitant inférieurement la pars ventralis thalami a été décrit par KUHLENBECK (1929), mais cet auteur ne fournit aucun détail sur le noyau lui-même.

Dans son travail sur le mésencéphale et le diencéphale des Téléostéens, BRICKNER (1929) décrit sous le sulcus medius et dans le voisinage immédiat de la paroi épendymaire un „nucleus tegmenti motorius ventralis”. Ce noyau doit être nettement distingué de celui que j'ai considéré comme homologue à la pars ventralis thalami des Amphibiens et auquel BRICKNER ne fait aucune allusion. A mon avis, le nucleus tegmenti motorius ventralis de BRICKNER est au noyau que j'ai décrit sous le nom de pars ventralis thalami, ce que la région fibrillaire externe du thalamus ventral d'un Amphibien est à la couche cellulaire interne correspondante.

CONCLUSIONS.

1. La région périventriculaire du diencéphale des Téléostomes est occupée par deux noyaux homologues l'un à la pars dorsalis, l'autre à la pars ventralis thalami des Amphibiens.

2. Chez les Crossoptérygiens, formes primitives du groupe des Axonoptérygiens (= Crossoptérygiens + Dipneustes) et les Chondrostéens, formes primitives du groupe des Actinoptérygiens, la pars dorsalis thalami et la pars ventralis ont, tout comme chez les Amphibiens, un aspect histologique semblable et des dimensions à peu près équivalentes.

A partir de ces formes primitives, une évolution identique s'est produite chez les Axonoptérygiens et les Actinoptérygiens. Aussi bien chez les premiers que chez les seconds, elle a eu pour résultat l'apparition de différences structurales de plus en plus marquées entre la pars dorsalis et la pars ventralis thalami, différences qui se traduisent en gros par un développement excessif de la masse fibrillaire correspondant à la pars dorsalis (cfr. Dipneustes et Téléostéens).

3. Chez tous les Téléostomes la pars ventralis se prolonge vers l'avant bien au-delà de la pars dorsalis.

Chez les Crossoptérygiens et les Chondrostéens elle peut-être suivie jusque dans le télencéphale où elle se continue par l'area somatica de JOHNSTON.

Chez les Ganostéens et les Téléostéens, sa partie sous-habénulaire se différencie en une région particulière, l'eminentia thalami, en relation avec le nucleus preopticus, la stria-medullaris, la commissura transversa et le fasciculus descendens de BRICKNER.

Que Monsieur le Professeur C. U. ARIËNS KAPPERS et son assistant, Monsieur J. L. ADDENS, veuillent trouver ici, l'expression de toute ma gratitude pour la bienveillance qu'ils m'ont témoignée au cours de l'exécution des recherches dont il vient d'être rendu compte.

INDEX BIBLIOGRAPHIQUE DES AUTEURS CITÉS.

ABEL, O. (1919). Die Stämme der Wirbeltiere. Berlin und Leipzig.
 BRICKNER, R. M. (1929). A description and interpretation of certain parts of the teleostean midbrain and thalamus. Journ. Comp. Neur. Vol. 47, pp. 225—282.

CATOIS, E. H. (1901). Recherches sur l'histologie et l'anatomie microscopique de l'encéphale chez les Poissons. Bull. sc. France—Belgique, t. **36**, pp. 1—166.

DOLLO, L. (1895). Sur la Phylogénie des Dipneustes. Bull. Soc. Belge de Géol., Paléont., etc., t. **9**, p. 116.

FRANZ, V. (1912). Beiträge zur Kenntnis des Mittelhirns und Zwischenhirns der Knochenfische. Fol. Neuro-Biol., Bd. **6**, pp. 402—450.

_____. (1920). Zur mikroskopischen Anatomie der Mormyriden. Zool. Jahrb., Abt. Anat. Ont., Bd. **42**, pp. 91—148.

GOLDSTEIN, K. (1905). Untersuchungen über das Vorderhirn und Zwischenhirn einiger Knochenfische. Arch. mikr. Anat., Bd. **66**, pp. 135—219.

HALLER, B. (1898). Vom Bau des Wirbeltiergehirns, I Teil, *Salmo* und *Scyllium*. Morph. Jahrb., Bd. **26**, pp. 345—641.

HERRICK, C. J. (1910). The morphology of the forebrain in Amphibia and Reptilia. Journ. Comp. Neur., Vol. **20**, pp. 413—547.

_____. (1917). The internal structure of the midbrain and thalamus of *Necturus*. Journ. Comp. Neur., Vol. **28**, pp. 215—348.

_____. (1922). Functional factors in the morphology of the forebrain of Fishes. Libro en honor de Ramon y Cajal. Madrid, 1922.

HOLMGREN, N. (1920). Zur Anatomie und Histologie des Vorder- und Zwischenhirns der Knochenfische. Act. Zool., Bd. **1**, pp. 137—314.

HOLMGREN, N. and VAN DER HORST, C. J. (1925). Contribution to the morphology of the brain of *Ceratodus*. Act. zool. Bd. **6**, pp. 59—165.

HOOGENBOOM, K. J. HOCKE (1929). Das Gehirn von *Polyodon folium Lacép.* Zeitschr. mikr. Anat. Forsch., Bd. **18**, pp. 311—392.

JANSEN, J. (1929). A note on the optic tract in teleosts. Proc. Kon. Akad. Wetensch. Amsterdam, Vol. **32**, pp. 1105—1117.

JOHNSTON, J. B. (1901). The brain of *Acipenser*. Zool. Jahrb., Abt. Anat. Ont., Bd. **15**, pp. 1—204.

KAPPERS, C. U. ARIËNS (1921). Die vergleichende Anatomie des Nervensystems der Wirbeltiere und Menschen. II. Haarlem (De Erven F. Bohn).

KUHLENBECK, H. (1929). Ueber die Grundbestandteile des Zwischenhirnbauplans der Anamnier. Morphol. Jahrb., Bd. **63**, pp. 50—95.

LAMEERE, AUG. (1927). Abrégé de la classification zoologique. Paris (Douin).

RÖTHIG, P. (1923). Beiträge zum Studium des Zentralnervensystems der Wirbeltiere. Ueber das Zwischenhirn der Amphibien. Arch. mikr. Anat., Bd. **98**, pp. 616—645.

SHELDON, R. E. (1912). The olfactory tracts and centers in Teleosts. Journ. Comp. Neur., Vol. **22**, pp. 177—253.

Palaeontology. — On a Fossil Monkey found in the Netherlands (*Macacus cf. florentinus* Cocchi). By J. J. A. BERNSEN O.F.M. (Communicated by Prof. EUG. DUBOIS).

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

Among the remains of fossil Mammalia from the Tegelen Clay preserved in the Mission Museum at Steyl near Tegelen, I discovered the mandible of a Monkey. This fossil is important not only on account of its great rarity, but also for the determination of the geological age of the Tegelen Clay and of the climate reigning during its deposition.

DESCRIPTION :

The mandible is encased with a part of a long bone in a concretionary nodule of hardened, brown, ferruginous clay. This manner of fossilization viz. fossils included by hardened, ferruginous clay-nodules, is very common among the Tegelen fossils. The left ramus is missing totally. Of the right one the upper part is absent, the lower part is concealed by the matrix except the posterior border. At the left side the corpus mandibulae is visible (fig. 2). The inferior border of it presents a slightly convex outline passing gradually with a rounded line into the anterior border.

The dentition (fig. 1) is not complete. The incisors are wanting. The left last molar is broken away for the greater part. On the right side we see the strongly developed canine, the two separated roots of the penultimate premolar nearly the whole crown being worn away, the grinding surface of the last premolar mutilated at the outer side and the grinding surfaces of the three true molars. On the left side we see the root of the canine, the two roots of the penultimate premolar, the crown of which is broken off, the undamaged last premolar, the first true molar, the inner side of which is mutilated, the lightly damaged second true molar and a small part of the last true molar.

The last premolar and the three true molars of the right side show only their grinding surfaces, the rest of their crowns and the roots being concealed by the matrix. The corresponding teeth of the left side also show their outer side and their two exterior roots the matrix being broken away there. The grinding surfaces of the true molars consist of brownly coloured, bursted dentine surrounded by a vertical wall mutilated here and there of gray-blue enamel, the characteristic colours of teeth from the Tegelen Clay.

All teeth are very much worn down. The canines present very large roots converging strongly downward. The size of the roots shows that the mandible belonged to a male individual, a very old one as is evident from the crowns of the canines being worn away for the greater part. The inner surface shows a vertical groove.

The crown of the right penultimate premolar is nearly totally worn away. The curved first root projects forward to such an extent that it passes the posterior border of the canine. The great distance between the anterior and posterior root points to a considerable crown-length.

The ultimate premolar is very small and placed obliquely. The left one is the tooth least of all affected by wear. The grinding surface still shows the remains of the enamel-covering. The right one is more worn off and mutilated at the outer side.

The first true molar is considerably shorter than the second. The last true molar presents a large talon. In the true molars all cusps or ridges have disappeared by detrition. At the grinding surfaces the dentine lies bare; a few small islands of enamel in it are the remains of the covering enamel. The teeth-row presents a very straight outline.

At the penultimate premolar the height of the corpus mandibulae is ± 30 mm, at the last molar ± 26 mm. The greatest length of the mandible was at least 121 mm. The length of the mandibular teeth-row (including canine and last molar) is 67 mm. The distance between the second true molars is 28 mm, that between the last true molars ± 27.5 mm.

COMPARISON WITH RECENT FORMS :

The Tegelen mandible belonged without doubt to a catarrhine ape of the family: Cercopithecidae. This family is divided into two sub-families: the Cercopithecinae (*Macacus*, *Cercopithecus*, etc.) and the Semnopithecinae (*Semnopithecus* or *Pithecius*, *Colobus*), distinguishable by the arrangement of the cusps of their lower molars (cf. WEBER 1928). In the Tegelen jaw, however, these distinctive characters are irrecognizable in consequence of their being worn away by detrition.

I have observed that, as a rule, in the Semnopithecinae the first true lower molar is relatively longer than in the Cercopithecinae. Having measured the true molars of 18 jaws of *Macacus*-species, of 3 jaws of *Cercocebus*-species, of 10 jaws of *Semnopithecus*-species and of 1 jaw of *Colobus ferruginosus* I found that the Tegelen mandible in the relative length of the true molars agrees with 14 out of 18 *Macacus*-jaws and differs from all these 10 *Semnopithecus*-jaws and the one *Colobus*-jaw. *Cercocebus* approximates in some degree the *Macacus*, both belonging to the Cercopithecinae (cf. Table).

Moreover the Semnopithecinae are characterized by a short snout, shorter than that of the Cercopithecinae. With this peculiarity several characters of the mandible are connected. Comparing in the Leiden „Rijks Museum van Natuurlijke Historie“ numerous mandibles of *Semnopithecus*-species (*maurus*, *cephalopterus*, *Johnii*, *obscurus*, *nemoralis*, *melalophus*, *neglectus*,

(*pruinosus* and *pyrrhus*) I have observed that all *Semnopithecus*-species are characterized by a relatively high mandible, higher at the last true molar, than at the last premolar, by a very convex outline of the inferior border of the lower jaw and by a somewhat curved line of teeth.

In all these respects the fossil Tegelen Monkey differs from the Semnopithecinae. *Semnopithecus nasica* having a longer snout than the other Semnopithecinae approximates in some degree the Tegelen condition. The species of *Colobus* agree with *Semnopithecus*.

Of the Cercopithecinae the *Cercopithecus* differs clearly from the Tegelen fossil Monkey by its missing the talon in the last true molar.

Comparing numerous mandibles of *Macacus*-species (*nemestrinus*, *obscurus*, *speciosus*, *sylvanus*, *niger*, *gelada*, *erythraeus*) I observed a close agreement of form with the Tegelen specimen in the following points: a relatively long, low mandible, being higher at the last premolar than at the last true molar, and a straight line of teeth.

From the relative length of the true molars and from the form of the lower jaw we may conclude that the Tegelen fossil Monkey was a *Macacus*.

The agreement in form with the *Macacus inuus* (Gibraltar and North Africa) is very close. The Tegelen mandible, however, is of greater size. The actual length of the mandibular teeth-row is 67 mm if we include canine and last true molar; 70 mm, if also the incisivi are included. The natural length may have been rather smaller, about 68 mm. In the recent *Macacus inuus* (British Museum London) the latter length is 64 mm. The distance between right and left last molar is resp. 27.5 and 24 mm.

COMPARISON WITH FOSSIL FORMS:

The Middle Pliocene *Dolichopithecus ruscinensis* Depéret from Roussillon (DEPÉRET 1890) agrees with the recent *Semnopithecus* in the relative length of the true molars. DEPÉRET (l.c.) includes this species in the genus *Semnopithecus* on the ground of other characters of its lower molars. The fossil Tegelen Monkey, however, was certainly a *Macacus*.

The Middle Pliocene *Semnopithecus monspessulanus* Gervais from Montpellier differs in the same respect from the Tegelen Monkey as the preceding species (GERVAIS 1852).

The likewise Middle Pliocene *Macacus priscus* Gervais from Montpellier (GERVAIS 1852) agrees in the relative length of its lower true molars with the Tegelen *Macacus*, but is of considerably smaller size.

DEPÉRET (1929) considers *Dolichopithecus arvernensis* Depéret from the Upper Pliocene of Sénèze as a *Semnopithecus*. In my opinion the molars are too much worn down for anybody to see *Semnopithecus* characters at the grinding surfaces. In the relative length of the true molars the species mentioned agrees more with *Macacus* than with *Semnopithecus*. The form of the lower jaw, however, is decidedly that of the jaw of a *Semnopithecus*. In this respect and in the greater size the French species differs from the Tegelen one.

From the Upper Pliocene deposits of Val d'Arno *Macacus florentinus* Cocchi is described by COCCHI (1872) and RISTORI (1890). *Syn. Auxalinius florentinus* Cocchi, *Macacus auronius* F. Major, *Inuus florentinus* Ristori. The figures (COCCHI 1872, Tav. 1, fig. 3, 4, 5; RISTORI 1890, Tav. VIII, fig. 35, 36) show a close resemblance with the Tegelen mandible. The inferior border of the mandible is curved much alike that of the Tegelen specimen. In height the Dutch and the Italian mandibles agree one with another and differ likewise from that of *Dolichopithecus arvernensis* Dep. In both fossil *Macacus* the canines are grooved at the inner surface, the penultimate premolars have the same characteristic form, the ultimate premolars are placed obliquely, the relative length of the true molars is the same, the series of teeth is very straight. They differ, however, in size. The length of the mandibular row (incl. inciv.) is 55 mm in the Italian *Macacus*, whereas 68 mm in the Tegelen one. In recent *Macacus inuus* I observed a considerable variation of size. In my opinion the Tegelen fossil Monkey is to be named: *Macacus cf. florentinus* Cocchi.

In the British Museum of London I saw the penultimate upper molar of *Macacus pliocenicus* Owen (M. 1892) from the Pleistocene brickearths of Essex (?). The tooth agrees in size and form much with the corresponding tooth of the recent *Macacus inuus*. HINTON (1908) writes: "Certain doubts have been expressed to me as to whether the specimen in question, which is now in the British Museum, really came from the Grays brickearth". HINTON himself is disposed to regard the only known specimen of *Macacus pliocenicus* as a genuine Grays fossil.

According to HARLÉ (1910) a *Macacus* allied to the recent *Macacus inuus* from Gibraltar and Algeria coexisted with *Hyaena striata*, *Ursus arctos*, *Meles taxus*, *Canis lupus*, *Elephas meridionalis* or *antiquus*, *Rhinoceros Merckii*, *Equus caballus*, *Cervus elaphus*, etc. during a warm period of the Pleistocene. The remains of this fauna are found in the Cave of Montsaunés, Haute Garonne. This author, however, writes at the same place: "Cette faune n'est pas complètement connue et il se peut, qu'on soit amené ultérieurement à la diviser en plusieurs faunes successives".

HEDINGER (according to HINTON 1908) mentions a *Macacus* from the Steppenloch Cave in Wurtemburg. This cave deposit was regarded by HEDINGER and NEHRING as of Pliocene age.

GEOLOGICAL AGE OF THE TEGELEN CLAY:

Hitherto the remains of Monkeys are not known with certainty from European deposits yielding faunas younger than the Villafranchian faunas of Val d'Arno and Sénèze. The occurrence of a Monkey in the Tegelen Clay strengthens the opinion of the Villafranchian and thus Upper Pliocene age of that deposit. This opinion, based on the Tegelen fauna as a whole, has been defended from 1904 till now by EUG. DUBOIS (1904, 1905, 1911, 1923) and is confirmed by the revision undertaken by me. The results of this revision are to be published before long.

TABLE. Length of molars:

Tegelen	Macacus												Semnopithecus												
	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus	nemestrinus												
1. Mol. 1.	9	7.5	7.2	7	8	7.5	7.1	7	6.8	8.3	7.1	7.4	10	6	10	8.3	7	6.5	7.2						
2. Mol. 2.	11	9	7.5	9.3	9.2	8.6	8.6	8.2	12	9	8.4	12.5	8	12.7	11.7	8.6	7.6	7.6	8.4						
3. Mol. 3.	15	12	10	11.2	12.3	11.1	12	10.8	16	12	9.7	16.7	10.6	15.5	14.4	11.6	9.7	10							
4. Mol. 1 in % of Mol. 1+2+3	25.7	26.3	25.5	28.5	28	25.8	26.4	25.4	26.3	22.8	25.2	29	25.5	24.3	26.1	24.1	25.8	27.3	28.1						
5. Mol. 2 in % of Mol. 1+2+3	31.4	31.5	31.9	30.6	32.6	31.7	32	31.1	31.7	33	32	32.9	31.8	32.5	33.2	34	31.6	31.9	32.8						
6. Mol. 3 in % of Mol. 1+2+3	42.8	42.1	42.5	40.8	39.5	42.4	41.4	43.4	41.7	44	42.7	38	42.6	43	40.6	41.8	42.6	40.7	39						
Cercopithecus												Semnopithecus													
1. Mol. 1.	7	6.9	6.5	9	7.4	6.2	6.2	6.4	5.9	6.4	6.9	7	6.1	6.4	10	♀	—	—	7	10.4	7	7.5			
2. Mol. 2.	8	8.1	7.4	10	8	6.8	6.9	6.5	6	6.7	7.3	7.7	6.6	7.1	11	—	—	7.7	13.4	10	9.3				
3. Mol. 3.	9.5	10.4	9.9	12.4	10	8.4	7.3	7.7	7.7	8	9.1	9	8.3	9	13	13	9	18.4	12	12					
4. Mol. 1 in % of Mol. 1+2+3	28.5	27.1	27.3	28.6	28.7	29	30.3	31	30.1	30.3	29.6	29	28.5	29	29.4	—	29.5	24.4	24.1	26					
5. Mol. 2 in % of Mol. 1+2+3	32.6	31.8	31	31.8	31.1	31.7	33.8	31.5	30.6	31.7	31.3	32.5	31.4	31.5	32.3	—	32.5	31.4	34.5	32.2					
6. Mol. 3 in % of Mol. 1+2+3	38.7	40.9	41.6	39.4	38.9	39.2	35.7	37.3	39.2	37.9	39	38	39.5	40	38.2	39.3	38	43.1	41.4	41.6					

CLIMATE OF THE PERIOD DURING WHICH THE TEGELEN CLAY WAS DEPOSITED:

"As LARTET has stated, Monkeys are intolerant of cold, and the occurrence of their remains in a deposit is a proof that at the time of their existence the climate of the region in which they lived must have been a genial one" (HINTON 1908).

MAX WEBER (1928 Vol. II p. 801) is of another opinion. This author concluded from the facts that *Semnopithecus schistaceus* is living in the Himalayas and in Cashmere up to a height of 4000 M. and *Rhinopithecus roxellanae* in Tibet and North West-China as far as 38° northern latitude, that Monkeys can live outside of a warm climate. According to the same author *Macacus lasiotis* in China, *Macacus speciosus* in Japan are living as far as 40° northern latitude. But it is a fact that Monkeys nowadays generally live in a climate warmer than that reigning now in the Dutch province of Limbourg, and it is a fact also that the Monkey of Tegelen (51° 20' N.L.) lived more than 15 degrees of latitude northerly of its present near relative, the Gibraltar *Macacus inuus*. The cases mentioned by MAX WEBER are exceptions. Therefore I am justified in saying that the occurrence of a Monkey in the Tegelen Clay much strengthens the opinion admitting a climate considerably warmer during the time of its being deposited than nowadays, an opinion already based on the formerly known fossil Tegelen fauna and flora as a whole.

CONCLUSIONS :

1. The Monkey from the Tegelen Clay was a *Macacus* agreeing in its mandible closely with the fossil *Macasus florentinus* Cocchi from Val d'Arno and with the recent *Macacus inuus* from Gibraltar and Algeria, but was of rather greater size.
2. The Tegelen Clay is the most northern European locality having with certainty yielded a fossil Monkey.
3. The occurrence of a Monkey in the Tegelen Clay strengthens the opinion of the Upper Pliocene age of the Tegelen Clay and of the genial climate reigning during its deposition.

BIBLIOGRAPHY.

COCHI, I.:

1872. Si di due Scimmie fossili italiane. Boll. del R. Comitato Geol. d'Italia. Vol. III, N°. 3 and 4.

DEPÉRET, CH.:

1890. Les Animaux pliocénés du Roussillon. Mém. de la Soc. géol. de France.

Pal. Mém. N°. 3.

1929. *Dolichopithecus arvernensis* Depéret. Nouveau Singe du Pliocène supérieur de Sénèze (Haute Loire). Travaux du Laboratoire de Géologie de la Faculté des Sciences de Lyon. Fasc. XV, Mém. 12.

DUBOIS, EUG.:

1904. On an Equivalent of the Cromer Forest-Bed in the Netherlands. Proceedings Vol. VII, 1904.

J. J. A. BERNSEN, O. F. M.: ON A FOSSIL MONKEY FOUND IN THE
NETHERLANDS (*Macacus* cf. *florentinus* COCCHI).



FIG.1



FIG.2

DUBOIS, EUG.:

1905. L'âge de l'argile de Tegelen et les espèces de cervidés, qu'elle contient. Arch. du Musée Teyler Haarlem. Sér. II, Vol. IX.

1911. De beteekenis der palaeontologische gegevens voor de ouderdomsbepaling der Klei van Tegelen. Tijdschrift v. h. Kon. Ned. Aardrijksk. Genootsch. Tweede serie, Dl. XXVIII.

1923. Limburg's bodem als getuige van klimaatsveranderingen. Handelingen van het XIXe Ned. Nat. en Geneesk. Congres te Maastricht.

GERVAIS, P.:

1859. Zoologie et Paléontologie françaises.

HARLÉ, E.:

1910. Les mammifères et oiseaux quaternaires connus jusqu' ici en Portugal. "Comunicações" du Service Géologique du Portugal. Tom. VIII.

HINTON, M. A. C.:

1908. A Monkey's Bone from the Forest Bed. The Geol. Magazine. New series. Decade V, Vol. 5.

LYDEKKER, R.:

1885. Catalogue of the Fossil Mamm. in the Brit. Mus. Part I.

MAYET, L. et ROMAN, FR.:

1923. Les Éléphants pliocènes. Prem. Partie: *El. planifrons* Falc. des Sables de Chagny et les faunes de Mammifères d'âge Villafranchien-Saint-Prestien.

OWEN, R.:

1846. A History of British Fossil Mammals and Birds.

RISTORI, G.:

1890. Le Scimmie fossili italiane. Boll. del. R. Comitato Geol. d' Italia. Ser. III, Vol. I, N°. 7 en 8.

WEBER, MAX.:

1928. Die Säugetiere. Bd. II.

EXPLANATION OF THE PLATE.

Fig. 1. Mandible; crown view; nat. size.

Fig. 2. " ; external view of the left side; nat. size.

Botany. — Das Quercetin bei den Magnoliaceae und seine Verbreitung im Pflanzenreiche. Von TH. WEEVERS. (Communicated by J. C. SCHOUTE.)

(Communicated at the meeting of September 27, 1930).

Bekanntlich färben die Blumenblätter vieler Magnoliaarten sich bei Verletzung durch Nachtfröste schnell und stark braun, ein typischer Fall von Nekrobie im Sinne BEYERINCK's. Diese Tatsache veranlasste mich dieses Objekt auf das Vorhandensein eines Chromogens zu prüfen¹⁾. Die Blumenblätter von Magnolia Yulan Desf. var. Soulangiana wurden mit kochendem Alkohol (96 %) extrahiert und die Extrakte auf dem Wasserbade eingeengt bis der Alkohol fast völlig verflüchtigt war. Dann wurde die wässrige Lösung zweimal mit dem gleichen Volum Äthers ausgeschüttelt und der im Wasser gelöste Äther durch Einengen auf dem Wasserbade entfernt. Beim Abkühlen scheidet sich dann ein kristallinischer Körper aus, der durch wiederholtes Umkristallisieren aus Wasser gereinigt wurde.

Dieser Körper kristallisiert in feinen, hellgelben Nadelchen, die Doppelbrechung zeigen. In kaltem Wasser ist er fast völlig unlöslich, löst sich jedoch in kochendem Wasser mit hellgelber Farbe. (Löslichkeit 1 auf 2500 Teile). Der Körper ist unlöslich in Benzol, Äther und Chloroform, ziemlich gut löslich in Aethylalkohol und Methylalkohol; beim Erhitzen an der Luft verbrennt er mit leuchtender Flamme und hinterlässt einen kohligen Rückstand. Die Schmelzpunktbestimmung ergab keinen deutlichen Schmelzpunkt; bei $\pm 290^\circ$ C. fangen die Kriställchen an sich braun zu färben und sintern zusammen.

Die wässrige Lösung des Stoffes wird durch KOH und NH_3 hochgelb gefärbt; eine Spur einer FeCl_3 Lösung färbt die wässrige Lösung des Körpers schwarzgrün, welche Farbe beim Erhitzen nach rotbraun umschlägt. Letztere Tatsachen deuten auf flavonartige Körper oder deren Glykoside hin²⁾. Wahrscheinlich lag also ein Flavonolderivat wie Quercetin vor, denn letzteres zeigt ganz ähnliche Reaktionen und hat dieselbe Löslichkeitsverhältnisse, auch gibt es wie obengenannter Körper mit ammoniakaler Silbernitratlösung bei Zimmertemperatur einen Silberspiegel. Nach BEILSTEIN hat das Quercetin seinen Schmelzpunkt bei 310° C.; das reine Produkt von MERCK ergab jedoch bei wiederholter Prüfung stets eine Braunfärbung bei 295° C. und nachheriges Zusammensintern, sein Betragen war also völlig dem des obengenannten Körpers ähnlich: ein scharfer Schmelzpunkt war

¹⁾ WEEVERS, TH. Betrachtungen und Untersuchungen über die Nekrobie und die letale Chloroformeinwirkung. Recueil des Trav. bot. Néerl. 1912.

²⁾ Ebenfalls die bei Reduktion durch Wasserstoff in statu nascendi sich zeigende Rotfärbung der Lösung.

ebensowenig vorhanden. Das Quercitrin schmilzt schon bei 168° C., das Quercetinglykosid lag also nicht vor 1).

Herr Kollege J. P. WIBAUT war so freundlich einige Elementaranalysen des Körpers machen zu lassen.

Diese ergaben	4.25 % H und 53.29 % C.
	4.25 % H und 53.11 % C.
Umgerechnet also	$C_{14.62}$ H_{14} $O_{8.73}$
	$C_{14.56}$ H_{14} $O_{8.76}$

Das Quercetin besitzt zwei Moleküle Kristallwasser, die Molekularformel $C_{15}H_{10}O_7 + 2H_2O$ gibt also $C_{15}H_{14}O_9$.

Die Übereinstimmung ist also ziemlich gut zu nennen, die erhaltenen Werte stimmen jedenfalls besser zu Quercetin als zu dem Methylquercetin, das auch wegen des Schmelzpunktes hier nicht vorliegen kann 2).

Wenn dieses ebenfalls zwei Moleküle Kristallwasser besitzt, so wird die Elementarformel $C_{16}H_{17}O_9$ und auf H_{17} umgerechnet geben obengenannte Daten $C_{17.7}H_{17}O_{10.6}$, die Abweichung ist hier also grösser. Bei andern Quantitäten Kristallwassers wäre die Abweichung noch grösser.

Bloss einen Unterschied mit Quercetin habe ich beobachten können; der Körper gibt mit starker Schwefelsäure eine hochgelbgefärbte Lösung mit blaugrüner Fluoreszenz, während letztere beim reinen Quercetin von MERCK fehlt. Der Unterschied kann jedoch dadurch bedingt sein, dass unsrem aus den Magnoliablumenblättern erhaltenen Produkt eine ganz kleine Menge eines andern Körpers beigemischt ist, der die Fluoreszenz verursacht.

Wird eine amyalkoholische Lösung des Magnoliaquercetins mit 14 % HCl versetzt und bei Zimmertemperatur ein wenig Magnesium hinzugefügt, so färbt die Lösung sich schön rot. Bei Verwendung reinen Quercetins ist die Farbnuance einigermassen verschieden, vielleicht muss diese Tatsache demselben Umstand zugeschrieben werden.

Obenstehendes berechtigt uns also zu der Annahme, dass in den Blumenblättern der Magnolia Yulan Quercetin vorliegt. Aus den Blättern und der Rinde konnte ich es jedoch nicht isolieren, ebensowenig gelang mir der Nachweis des Quercitrins in diesen Teilen 3).

Jetzt kam die Frage ob Quercetin das gesuchte Chromogen sei.

Brachte ich die Blumenblätter eine Stunde in einen Raum, wo die Temperatur — 5° C. war, sodass sie ganz erfroren und sich braun färbten so bald sie wieder auftauten, so war aus diesen Blumenblättern das

1) Kochen mit Säuren liess die schwache Reduktion der FEHLINGSchen Lösung deshalb unverändert.

2) Methylquercetin hat seinen Schmelzpunkt bei 156° C.

3) Die Teile wurden mit 96 % Alkohol extrahiert, der Auszug eingeeignet und die Verunreinigungen unter Zusatz von Eisessig durch alkoholische Bleiazetatlösung ausgefällt. Dann wurde das Filtrat durch H_2S entbleit, zur Trockne verdampft und der Rückstand mit Alkohol aufgenommen, endlich das Quercitrin durch Wasserzusatz eventuell gefällt.

Quercetin ebensogut zu isolieren. Letzteres macht die Annahme, dass das Quercetin hier als Chromogen fungiere, wenigstens unwahrscheinlich.

Die Braunfärbung der frischen Blumenblätter ist ebensogut bei Einwirkung einer 10 % H_2O_2 Lösung zu beobachten. Werden die Blumenblätter schnell zerrieben und die Masse filtriert, so färbt dieser wässrige Extrakt sich beim Zusatz einer 10 % H_2O_2 Lösung schnell braun, besonders bei Hinzufügung von feinzerriebenem Meeresrettig. Bekanntlich färbt feinzerriebener Meeresrettig sich mit 10 % H_2O_2 nicht braun, sodass im Filtrat der Blumenblätter das Chromogen vorhanden sein muss. Wurde einer Quercetinlösung (Präp. MERCK) 10 % H_2O_2 und feinzerriebener Meeresrettig hinzugefügt, so erfolgte keine Braunfärbung, ebensowenig als das aus den Blumenblättern isolierte Quercetin benutzt wurde.

Das Quercetin ist also *nicht* das gesuchte Chromogen. Einige Versuche mit *Magnolia stellata* Maxim konnten ebenfalls den Beweis, dass das Quercetin nicht als Chromogen fungiere, erhärten. Die Blumenblätter dieser Art färben sich bei Einwirkung der Nachtfröste ebenso schön braun wie die der *Magnolia Yulan* (*Soulangiana*), das Chromogen ist also auch hier vorhanden. Dennoch schlugen alle Versuche das Quercetin aus den *M. stellata* Blumenblättern zu isolieren fehl, der Körper ist nicht oder nur in Spuren vorhanden.

Eine zweite Frage betrifft den Zusammenhang des Quercetins mit den Anthozyanen oder eigentlich mit den Anthozyanidinen¹⁾.

Bekanntlich ist von WILLSTÄTTER²⁾ der chemische Zusammenhang zwischen den Flavonolkörpern und den Anthozyanidinen endgültig festgestellt worden. Er erhielt durch Reduktion mit Magnesium und Säuren aus dem Quercetin das Cyanidin, während früher einerseits³⁾ eine Bildung der Anthozyanine durch Oxydation der Flavone, andererseits⁴⁾ durch Reduktion derselben behauptet wurde.

Später hat dann NOACK⁵⁾ diesen chemischen Zusammenhang physiologisch zu verwerten gesucht, wobei er sich hauptsächlich mit der Anthozyanbildung in den Blättern beschäftigte. Schlagende Beweisgründe für einen direkten Zusammenhang im Stoffwechsel hat er jedoch nicht beizubringen vermocht. Ebensowenig gelang dies den Forschern, die ein Vorkommen von Flavonen und Anthozyanen nebeneinander in denselben Organen oder in verschiedenen gefärbten Varietäten studierten. PERKIN⁶⁾ fand in *Delphinium consolida* neben einem Kaempferolglykosid das Delphinin und nicht das chemisch weit mehr verwandte Anthozyanin, Pelargonin. Gelbe *Viola tricolor* Varietäten enthalten Quercetinglykoside während in schwarzblauen

¹⁾ Die Aglukone werden jetzt Anthozyanidine, die Glykoside Anthozyanine genannt.

²⁾ WILLSTÄTTER, R. und MALLISON, H.: Sitz. Ber. Berl. Ak. Wiss. 1914.

³⁾ WHELDALE, M.: Proc. phil. Soc. Cambridge, 1909, vergleiche auch WHELDALE ONSLOW, M.: The anthocyaninpigments of plants, Cambridge 1925.

⁴⁾ COMBES, R.: Comptes R. Acad. sci. Paris, 1913.

⁵⁾ NOACK, K.: Zeitschr. f. Botan. 1918, 1922.

⁶⁾ PERKIN, A. G.: The natural Organic Colouring Matters London 1918.

Varietäten derselben Art nicht das korrespondierende Cyanidglykosid sondern das Delphinidglykosid vorhanden sein soll. EVEREST¹⁾ behauptet jedoch, das neben dem Anthozyan Violanin das korrespondierende Flavonol Myricetin in diesen Blüten vorliege; die Identifikation war jedoch fraglich.

Es lag deshalb auf der Hand zu prüfen ob hier bei Magnolia ein physiologischer Zusammenhang vorliege, ob das in den letzten Stadien der Blumenentfaltung sich bildende Anthozyan aus dem Quercetin herstamme.

Leider entwickeln abgetrennte Blumenknospen der Magnolia sich nicht weiter und bleibt die Anthozyanbildung aus, sodass scharfe Schlussfolgerungen, die nur mit isolierten Teilen zu erhalten sind, unmöglich waren.

Trotzdem war es interessant zu wissen ob bei der starken Zunahme der Anthozyane während der Blumenentfaltung das Quercetin ab- oder zunehme.

Dazu war es notwendig, die in den Blumenblättern vorhandene Quantität des Quercetins wenigstens einigermassen bestimmen zu können.

Es zeigte sich, dass beim zweimal wiederholten Ausziehen mit einer proportionellen Quantität 96 % Alkohols (300 c.c. pro 70 Knospen oder 35 Blumen) alles Quercetin aus den Blumenblättern ausgezogen wurde, wenigstens wenn die Blumenblätter jedesmal ausgesprest wurden.

Engte man dann den alkoholischen Extrakt genügend ein und schüttelte dreimal mit Äther aus, so fiel nach Entfernen des Äthers auf dem Wasserbade, das Quercetin fast völlig beim Abkühlen aus. Wurde nämlich die Mutterlauge bis zur Sirupdicke eingeengt und mit 96 % Alkohol versetzt, so war dem Sirup gar kein Quercetin mehr zu entziehen, obschon die Löslichkeit des Quercetins in Alkohol sehr viel grösser ist als in Wasser.

Das Wägen des ausgeschiedenen unreinen Quercetins nach Trocknen bei 95° C., gibt selbstverständlich keine wirkliche quantitative Bestimmung dieses Körpers; die erhaltenen Zahlen sind jedoch zuverlässig genug, um eine Vergleichung der Quantitäten in Knospen und erwachsenen Blumen zu gestatten. Alles benutzte Material stammte von einem und demselben Exemplar her.

2 April 70 Knospen	419 mg. Quercetin, pro Knospe \pm 6 mg.
9 „ 35 Blumen (jung)	260 „ „ „ „ \pm 7.5 „
16 „ 35 „ (erwachsen)	281 „ „ „ „ \pm 8 „

Von einer Abnahme des Quercetins während der Blumenentfaltung und Anthozyanbildung ist also gar nicht die Rede. Bei *Victoria regia* Blüten konnte NOACK²⁾ ebensowenig eine Beziehung zwischen Anthozyanen und Flavonen beobachten.

Selbstverständlich sagt Obenstehendes nicht viel aus über eine eventuelle

¹⁾ EVEREST, A. E.: Proc. Roy. Soc. London, 1918.

²⁾ NOACK, K.: Zeitschrift für Botanik 1922.

Beziehung der Anthozyane und des Quercetins zu einander. Das Quercetin könnte zum Teil in Anthozyan umgebildet und wieder neues Quercetin gebildet worden sein, das würde bei obigen Daten ebensogut möglich sein. Hätte jedoch das Quercetin bei der Anthozyanbildung stark abgenommen, so wäre ein direkter Zusammenhang dieser Stoffe viel wahrscheinlicher gewesen; dieser Fall liegt jedoch nicht vor.

Zum Schluss noch einige Betrachtungen über die Verbreitung des Quercetins und seiner chemischen Verwandten im Pflanzenreich.

Hauptsächlich ist das Quercetin in glykosidischer Bindung als Quercitrin¹⁾ vorhanden und in dieser Form wurde es von ROCHLEDER²⁾ zuerst in 1840 in *Quercus tinctoria* Rinde nachgewiesen. Später wurde das Quercitrin in sehr verschiedenen Ordnungen und Familien aufgefunden, ich nenne z.B. Blätter von *Vitis vinifera* L., *Humulus lupulus* L., *Thea sinensis* Sms., *Fraxinus excelsior* L., Blüten von *Hibiscus* spec., *Viola tricolor* L., *Cheiranthus*, *Crataegus* u.s.w. Quercetin neben dem Quercitrin kommt z.B. in *Thea*, *Aesculus* und *Vitis*-Blättern vor, während freies Quercetin aus vielen Blättern, Blüten und Rinden erhalten wurde³⁾.

Das Rhamnetin, der 7-Methyläther von Quercetin findet sich bei *Rhamnus* spec., das Rhamnazin der 3—7 Dimethyläther von Quercetin ist nachgewiesen in den Rhamnusbeeren und schliesslich kommt das Isorhamnetin, der 3-Methyläther des Quercetins bei *Cheiranthus Cheiri* L., *Delphinium* spec. und *Cassia angustifolia* Vahl vor, also wiederum bei einigen im Stammbaum weit von einander entfernten Familien.

Die Übereinstimmung mit den früher von mir studierten Xanthinderivaten⁴⁾ ist gewiss eine schlagende zu nennen.

Von beiden Stoffen werden strukturell verschiedene Methylderivate im Pflanzenreich aufgefunden; bei den Xanthinderivaten das 1. 3. 7 Trimethylxanthin (Koffein), das 3. 7. Dimethylxanthin (Theobromin), das 1. 3. Dimethylxanthin (Theophyllin) und ebenfalls, obschon selten, das 3-Methylxanthin.

In beiden Fällen können mehrere Methylderivate neben einander in derselben Pflanze vorkommen. *Rhamnus* enthält Quercetin, Mono- und Dimethylquercetin, *Theobroma Cacao* L. Mono- und Dimethylxanthin, *Thea sinensis* Sms. Mono- Di- und Trimethylxanthin. Ebenfalls kommen die Quercetine wie die Xanthinderivate bei Pflanzen aus sehr verschiedenen Zweigen des Stammbaumes vor, während nahe verwandte Pflanzen in bezug auf die An- oder Abwesenheit dieser Stoffe völlig verschieden sein können.

¹⁾ Das Quercitrin liefert bei Spaltung neben Quercetin Rhamnose.

²⁾ ROCHLEDER, Sitz. ber. Wien. Ak. 30.

³⁾ Es ist jedoch die Frage ob hier das Quercetinglykosid nicht ebenfalls vorhanden sei. Angeblich enthalten junge Rebenblätter mehr Quercitrin, alte mehr Quercetin.

⁴⁾ WEEVERS, TH.: Die Funktion der Xanthinderivate im Pflanzenstoffwechsel. Arch. Néerl. des Sc. Exactes et Naturelles, Serie III, Bd. 5, 1930.

Unterschiede liegen jedoch auch vor, z.B. dass die Xanthinderivate sowohl in den vegetativen als in den generativen Teilen vorkommen, die Quercetine meistens in den generativen. Liegt eine Annahme auf der Hand diese Tatsachen zu erklären?

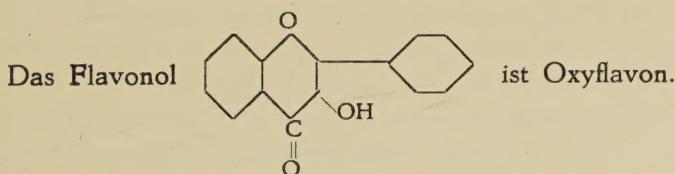
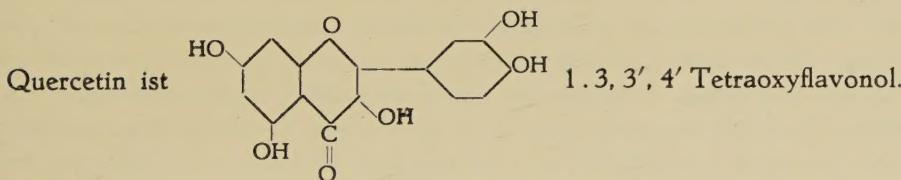
Ich meine, sie ist diese: Beide, sowohl die Xanthinderivate, Koffein und Theobromin, wie die Quercetine stehen in direktem genetischem Zusammenhang mit allgemein vorkommenden Produkten des Stoffwechsels, die im Falle der ersteren, der Xanthinderivate sowohl in vegetativen als in generativen Teilen, im Falle der Quercetine meistens in den generativen vorhanden sind.

Durch Sekundärprozesse wie die Methylierung oder Hydroxylierung werden, wenn die diesbezügliche Mutation im Genotypus aufgetreten ist, diese Sekundärprodukte hie und da im Stammbaum der Angiospermen gebildet.

In bezug auf die Xanthinderivate habe ich schon früher annehmlich machen können, dass der Ausgangspunkt das allgemein vorkommende Stoffwechselprodukt Xanthin ist; wie steht es jedoch um die Quercetinderivate?

Wenn der Vergleich völlig zutreffen würde, so müsste der allgemein vorkommende Stoff das Quercetin selbst sein, die Wahrscheinlichkeit, dass dem so ist, scheint mir jedoch nicht gross zu sein, obschon sein Vorkommen schon für zahlreiche Arten aus sehr verschiedenen Familien erwähnt wird¹⁾.

Das Quercetin gehört jedoch zu der Gruppe der Flavonole.



Flavone und Flavonolderivate kommen sehr allgemein sowohl als Aglukon wie in glykosidischer Bindung bei den höheren Pflanzen vor. Das Flavon selbst ist nachgewiesen bei *Primula farinosa* L.

¹⁾ CZAPEK, F.: Biochemie der Pflanzen 2e Aufl. Bd. 3 erwähnt: *Cuscuta*, Blätter von *Aesculus*, *Vitis*, *Crataegus*, *Eugenia Chequen*, *Ailanthus*, *Trifolium repens*; Zwiebel von *Allium Cepa*, Rhizom von *Podophyllum*, Rinde von *Cotinus coggygria*, *Pirus Malus*, Blüten von *Prunus spinosa*, *Aesculus*, *Cornus*, *Cedrela Toona*, Beeren von *Hippophae*, *Rhamnus*, Fruchtschwielen von *Rumex obtusifolius*, *Polygonum saccharinense* und *persicaria*.

Chrysin	1. 3.	Dioxyflavon in den Knospen von <i>Populus nigra</i> L.
Apigenin	1. 3. 3'.	Trioxylflavon bei <i>Antirrhinum</i> , <i>Anthemis</i> , als Glykosid Apin bei vielen Umbelliferen, <i>Reseda</i> .
Luteolin	1. 3. 3'. 4'.	Tetraxyflavon bei <i>Reseda luteola</i> L., <i>Genista tinctoria</i> L., <i>Digitalis purpurea</i> L.
Flavonolderivate sind:		
Myricetin	1. 3. 2'. 3'. 4'.	Pentaoxyflavonol bei <i>Myrica</i> (Rinde), <i>Rhus</i> , <i>Arctostaphylos Uva ursi</i> Spr.
Kaempferol	1. 3. 3'.	Trioxylflavonol bei <i>Prunus</i> , <i>Delphinium</i> sp. <i>Robinia pseudacacia</i> L., <i>Polygonum Indigofera</i> .
Fisetin	1. 3'. 4'.	Trioxylflavonol bei <i>Rhus</i> spec.
Galangin	1. 3.	Dioxyflavonol bei <i>Alpinia officinarum</i> Hanco.

Rutin, ein Glykosid, das durch hydrolytische Spaltung Quercetin und Rhamnose liefert, findet sich bei *Ruta graveolens* L., *Capparis spinosa* L., *Sophora japonica* L., *Polygonum Convolvulus* L., *Polygonum Fagopyrum* L., *Empetrum nigrum* L. u.s.w.

Die Liste wäre leicht noch zu vergrössern, sie genügt jedoch schon zu zeigen, dass Flavon- und Flavonolderivate sehr allgemein und in den verschiedensten Pflanzenfamilien vorkommen. In welcher Weise diese Stoffe mit den gewöhnlichen Stoffwechselprodukten zusammenhängen, ist eine Frage, die vorläufig noch schwer zu beantworten ist. Wahrscheinlich jedoch werden aus einem Grundkörper durch sekundäre Hydroxylierungs- und Methylierungsprozesse hie und da im Stammbaum die obengenannten Stoffe wie Quercetin, Luteolin u.a. gebildet und eben weil diese Methylierung und Hydroxylierung in so verschiedenen Pflanzen eintreten können und der Grundkörper so allgemein vorhanden sein muss, deutet die Anwesenheit von Quercetin in zwei Pflanzenarten durchaus nicht auf ihre nähere Verwandtschaft hin. Sowie ich schon in meiner letzten Arbeit über die Xanthinderivate¹⁾ hervorgehoben habe, treffen die sogenannten „Biochemischen Grundgesetze“ IWANOW's²⁾ in dieser Hinsicht durchaus nicht zu.

ZUSAMMENFASSUNG :

Die Blumenblätter einiger Magnoliaarten z.B. *Magnolia Yulan* Desf. enthalten Quercetin, die von *M. stellata* enthalten es nicht oder blass in Spuren. In Blättern und Zweigen der *Magnolia Yulan* war kein Quercetin und ebensowenig Quercitrin nachzuweisen.

¹⁾ WEEVERS, TH.: Arch. Néerl. des Sc. exactes et Naturelles. Serie III, Bd. 5, 1930.

²⁾ S. IWANOW, Ber. d. d. bot. Gesellschaft 1926.

Das Quercetin ist nicht das Chromogen, das bei Nekrobiose, durch seine Oxydation, die Braunfärbung der Blumenblätter hervorruft.

Für einen direkten Zusammenhang im Stoffwechsel der Blumenblätter von Magnolia Yulan zwischen den Anthozyanen und dem Quercetin waren keine Anweisungen, geschweige Belege zu finden. Bei der starken Anthozyanzunahme während der Blumenfaltung nimmt die Quercetinquantität nicht ab, vielmehr zu.

Das Vorkommen des Quercetins bei verschiedenen Pflanzen deutet durchaus nicht auf eine nähere genetische Verwandtschaft dieser Arten hin.

